

明 細 書

滴下ノズル装置、滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、液滴表面固化装置、アンモニア水溶液循環装置、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置

技術分野

[0001] この発明は、滴下ノズル装置、滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、液滴表面固化装置、アンモニア水溶液循環装置、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関し、さらに詳しくは、実質的に真球の重ウラン酸アンモニウム粒子を形成するのに好適な滴下原液の液滴を滴下することのできる滴下ノズル装置、変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することができるよう滴下原液を回収することのできる滴下原液回収装置、硝酸ウラニル含有の滴下原液をノズルから均一な体積を有する液滴にして滴下させることができるように滴下原液をノズルに供給することのできる滴下原液供給装置、ノズルから滴下される液滴がアンモニア水溶液貯留槽におけるアンモニア水溶液の表面に落下衝突しても容易に変形することがないように液滴表面を固化させる液滴表面固化装置、及びアンモニア水溶液貯留槽内のアンモニア水溶液に落下した液滴中の硝酸ウラニルを液滴の中心まで十分に重ウラン酸アンモニウムに変化させることができるようにするアンモニア水溶液循環装置、並びにこれら滴下ノズル装置、滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、液滴表面固化装置、及びアンモニア水溶液循環装置の少なくともいずれか一種を備えて成り、真球度の良好な重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することのできる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関する。

背景技術

[0002] 高温ガス炉は、高温ガス炉用燃料を投入する炉心構造を、熱容量が大きくて高温健全性の良好な黒鉛で、構成している。この高温ガス炉においては、高温下でも化学反応が起こらなくて安全性が高いと評価されているヘリウムガス等の気体を冷却ガスとして用いているので、出口温度が高い場合でも冷却ガスを安全に取り出すことができる。したがって、約1000℃くらいにまで高温に加熱された前記冷却ガスは、発電

はもちろん水素製造や化学プラント等、幅広い分野で、安全な熱利用として、使用されている。

- [0003] 一方、この高温ガス炉に投入される高温ガス炉用燃料は、一般的に、燃料核と、この燃料核の周囲に被覆された被覆層とを備えて成る。燃料核は、例えば、二酸化ウランをセラミックス状に焼結してなる直径約350〜650 μm の微小粒子である。
- [0004] 被覆層は、一般的に複数の層構造を有する。4層構造を有する被覆層は、燃料核表面側より、第一層、第二層、第三層、および第四層と称される。燃料核と4層の被覆層から構成される被覆粒子の直径は、例えば、約500〜1000 μm である。
- [0005] 以上のような高温ガス炉用燃料は、重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を用いて、以下のようにして製造される。まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かして硝酸ウラニル溶液とする。次に、この硝酸ウラニル溶液と純水および増粘剤等とを混合し、攪拌して滴下原液とする。この滴下原液は滴下原液貯留槽に貯留される。調製された滴下原液は、所定の温度に冷却され、粘度が調製された後、滴下ノズル装置に移送される。滴下ノズル装置には一本の細径のノズルを備えている。移送されてきた滴下原液はノズルの先端から液滴としてアンモニア水溶液中に滴下される。アンモニア水溶液内に落下した液滴はその表面から、硝酸ウラニルから重ウラン酸アンモニウムへの反応が進行し、アンモニア水溶液内に十分な時間前記液滴が存在すると、液滴の内部にまで重ウラン酸アンモニウムの形成が進行する。
- [0006] なお、このアンモニア水溶液に滴下された液滴には、アンモニア水溶液表面に達するまでの行程中に、アンモニアガス雰囲気中を通過する。このアンモニアガスによって液滴表面がゲル化して被膜が形成されるので、被膜を形成した液滴がアンモニア水溶液表面に落下する際の衝撃による変形がある程度防止される。アンモニア水溶液中に落下させられた液滴中の硝酸ウラニルがアンモニアと十分に反応するならば、重ウラン酸アンモニウム粒子(以下、「ADU粒子」と略す場合がある。)が形成される。
- [0007] このADU粒子は、洗浄、乾燥された後、大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子となる。さらに、三酸化ウラン粒子は、還元および焼結されることにより、高密度のセラミックス状の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子を篩い分け、すなわち分級

して、所定の粒子径を有する燃料核微粒子を得る。

- [0008] ADU粒子を製造する際の最大の目標は、粒子径のそろった真球度の良好な内部欠陥のないADU粒子を製造することである。換言すると、いずれのADU粒子においても均一な直径を有し、いびつな形状を有していないこと、粒子の中心まで完全にADUとなっており、またクラック等が存在せず内部組織が健全であることが要求される。しかも大量にADU粒子を製造することも、ADU粒子を製造する際の大きな目標である。このような目標を達成するためには、以下に述べるように、現在のADU粒子製造装置には解決しなければならない様々の問題点がある。
- [0009] 個々の粒子が真球であるADU粒子を大量かつ均一に製造するためには、前記滴下ノズルの性能として、液滴体積が一定となるように液滴を落下させることが重要である。
- [0010] しかしながら、上記したような、液滴体積が一定となるように液滴を落下させることのできる滴下ノズルは、未だ見当たらない。そのため、粒子径が均一であり、真球性の良いADU粒子を得ることのできる滴下ノズル装置及び重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置(以下において、「ADU粒子製造装置」と称することがある。)の開発が望まれている。
- [0011] 従来のADU粒子製造装置は、一本の滴下ノズルを有する滴下ノズル装置を備えていたので、ADU粒子の生産量はノズルの振動数で決まり最大で200個/秒程度であった。さらに生産性を向上させるには、滴下ノズルの本数を増加させる必要がある。その場合、複数の各滴下ノズルから送出される滴下原液の送出量を均一にすることが必要であるが、そのような装置は未だ開発されていない。
- [0012] 個々の粒子が真球であるADU粒子を大量かつ粒径を均一に製造するためには、前記複数の滴下ノズルの性能として、各滴下ノズルから送出される液滴体積が一定となるように液滴を落下させることが重要である。
- [0013] しかしながら、上記したような、複数の各滴下ノズルから送出される滴下原液の送出量を均一にし、液滴体積が一定となるように液滴を落下させることのできる滴下ノズルは、未だ見当たらない。そのため、粒子径が均一であり、真球性の良い二酸化ウラン燃料核を大量に得ることのできる滴下ノズル装置及びADU粒子製造装置の開発が

望まれている。

- [0014] 従来のADU粒子製造装置においては、ノズルから原液の滴下を停止した場合に、滴下原液貯留槽からノズルに原液を移送する原液移送配管中に原液が残留してしまう。そして、次に、滴下原液貯留槽に貯留された新たな原液を、原液移送配管を通じてノズルに移送すると、残留していた古い原液つまり残留原液がノズルから滴下され、古い原液の液滴がアンモニア水溶液に滴下されることとなるのである。
- [0015] 前記残存原液は、滴下原液貯留槽において温度制御された新たな原液とは性質または性状を異にする。このため、アンモニア水溶液に滴下した際に形成されるADU粒子の変形を生じやすく、ADU粒子を熟成、洗浄、乾燥、焙焼、還元および焼結の各工程を経て製造される二酸化ウラン粒子の真球度、外径、内部組織などのスペックを充足することができないという問題があった。このことは、製造される二酸化ウラン粒子の歩留まりの低下にも繋がるものである。前記問題は、前記残存原液の温度が室温まで上がり、原液の粘度が下がってしまうことに起因するものと推測される。
- [0016] ADU粒子製造装置において、ADU粒子の生産量を向上させるため、複数のノズルを備えた場合、いずれのノズルから落下するADU粒子においても同じ一定の体積を有するようにするためには、各ノズルから滴下される滴下原液の流量を同一にする必要があった。そのために、流量調節器を設け、滴下原液の滴下量を調節するようにしていたが、この流量調節器のみでは、各滴下ノズルから滴下される滴下原液の流量を同一にすることは困難であるので、形成されたADU粒子の粒径は不揃いになるという問題があった。
- [0017] 従来のADU粒子製造装置においては、滴下ノズル装置における一基又は複数基の滴下ノズルから滴下される液滴がアンモニア水溶液に向けて落下する落下行程はアンモニアガス雰囲気であった。そうすると、落下してアンモニア水溶液の液面に着水する液滴の表面がゲル化して被膜が形成されるが、着水時の衝撃による変形を防止するには不十分であった。また場合によってはアンモニア水溶液への着水時の衝撃により液滴が破裂してしまうこともあった。変形し、あるいは破裂してしまった液滴をアンモニア水溶液中で硝酸ウラニルとアンモニアとの反応を行っても、真球度の良好なADU粒子を歩留まりよく得ることができないという問題があった。また、複数の滴下

ノズルを有するADU粒子製造装置において、落下中の液滴にアンモニアガスを吹き付ける場合には、各々の液滴に均一にガスが掛からないという問題や吹き付けられたガスにより液滴の表面に波紋状の模様が生じるなどの問題があった。

[0018] 従来のADU粒子製造装置においては、硝酸ウラニルを含有する滴下液滴の内部までアンモニア水溶液を浸透させなければならなかった。

[0019] このアンモニア水溶液の浸透のために、アンモニア水溶液が貯留されたアンモニア水溶液貯留槽が使用されることが一般的であった。つまり、ADU粒子製造装置においては、硝酸ウラニル含有の原液を滴下するノズルの直下に、アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽が、配置される。滴下ノズル装置におけるノズルから原液を滴下することにより形成される液滴を、アンモニア水溶液貯留槽内に貯留されたアンモニア水溶液中に、滴下する。

[0020] すると、アンモニア水溶液中において、液滴中に存在する硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとが反応し、液滴内で重ウラン酸アンモニウム(ADU)が形成される。

[0021] 液滴内における硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとの反応は、液滴の表面から始まって時間の経過とともに液滴の内部に向かって前記反応が進行して行く。ところが、液滴表面の内部であって液滴表面の近傍に存在する硝酸ウラニルと液滴表面の外側であってその近傍に存在するアンモニウムイオンとの反応が進行するにつれて、液滴表面の外側であってその液滴表面近傍におけるアンモニア濃度が低下して行く。そのために、硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとの反応速度が遅くなる。また、ADU粒子の中心部に存在する硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとが反応するためには、液滴表面の外側に存在するアンモニウムイオンが液滴内に侵入し、液滴の内部へと拡散移動しなければならない。したがって、液滴の中心まで重ウラン酸アンモニウムに変えるには長い時間がかかるという問題点が生じ、また、液滴をアンモニア水溶液中に一定時間滞留させるという条件下では、硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとの反応が不十分に成りやすいという問題点が生じる。そのために、従来のADU粒子製造装置においては、粒径の大きなADU粒子の生成が困難であり、後の工程による処理後の燃料核に、その内部に空隙のある、不良品が生成してしまう場合がある。

[0022] また、内部まで反応が終了していないADU粒子は、内部がゼリー状で、非常に軟

らかいため、ウランを含むことで比重が大きいADU粒子が積み重なって堆積すると、アンモニア水溶液貯留槽の下部側に位置するADU粒子が変形し、真球度の低劣な不良品が多発するという問題もある。

[0023] 本発明は、前記課題を解決することを目的とする。

[0024] 本発明は、滴下ノズルから滴下される滴下原液の送出量を均一にすること、これによって均一な形状及び寸法を有するADU粒子を大量に製造することのできるように硝酸ウラニル含有の液滴を滴下することのできる一基のまたは複数基の滴下ノズル装置及びその滴下ノズル装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することをその目的とする。

[0025] 本発明は、このような従来の問題を解消し、変形のない粒径のそろったADU粒子を高い歩留まりで製造することのできる滴下原液回収装置、及びその滴下原液回収装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することをその目的とする。

[0026] 本発明は、このような従来の問題点を解消し、粒子径がそろったADU粒子を製造することができるように、硝酸ウラニル含有の液滴を滴下する滴下ノズル装置に滴下原液を供給する滴下原液供給装置及びその滴下原液供給装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することをその目的とする。

[0027] 本発明は、このような従来の問題点を解消し、真球性の良いADU粒子を製造することのできるように、硝酸ウラニル含有の液滴表面を適切に固化することのできる液滴表面固化装置及びこの液滴表面固化装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することを目的とする。

[0028] 本発明は、このような従来の問題点を解消し、真球性がよく内部欠陥のない高品質の重ウラン酸アンモニウム粒子を効率的に生産することができるアンモニア水溶液循環装置及びこのアンモニア水溶液循環装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することを目的とする。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0029] この発明は、

(1) 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を、アンモニア水溶液貯留槽に貯留された

前記アンモニア水溶液中に滴下する複数のノズルと、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器とを備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置であり、

(2) ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段が設けられて成ることを特徴とする前記請求項1に記載の滴下ノズル装置であり、

(3) 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する一基のノズル又は硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する複数基のノズルと、前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を収容可能に、前記一基のノズルの内容積又は複数基のいずれのノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、収容した滴下原液を重力に従って前記一基のノズル又は複数基の全てのノズルに供給する滴下原液収容部とを備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置であり、

(4) 前記滴下原液収容部が、前記一基のノズル又は複数基のいずれのノズルの水平断面積よりも大きい水平断面積を有して成る滴下原液収容部である前記(3)に記載の滴下ノズル装置であり、

(5) 前記滴下原液収容部が、前記一基のノズル又は複数基の全てのノズルに直結されてなる前記(3)又は(4)に記載の滴下ノズル装置であり、

(6) 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する一基のノズル又は硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する複数基の全てのノズルの先端部には、前記滴下原液の滴下方向に向かうエッジが形成されていることを特徴とする前記(3)～(5)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置であり、

(7) 前記ノズルに、滴下原液貯留槽に貯留された滴下原液を、実質的に定量かつ無脈動で供給する送液手段を備えてなることを特徴とする前記(1)～(6)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置であり、

(8) 滴下原液貯留槽に貯留されたところの、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下原液移送路を通じて送られ、その滴下原液をアンモニア水溶液に滴下させるノズルを有する滴下ノズル装置におけるそのノズルと前記アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽との間に、前記ノズルからアンモニア水溶液への滴下原液の滴下を停止したときに前記滴下原液移送路中に残存した前記滴下原液の残部を受容する残存滴下原液受器と、前記残存滴下原液受器に受容された滴下原液の残

部を前記滴下原液貯留槽に移送する残存滴下原液移送路とを有して成ることを特徴とする滴下原液回収装置であり、

(9) 前記滴下ノズル装置が前記(1)～(7)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置である滴下原液回収装置であり、

(10) 複数のノズルを備えた滴下ノズル装置におけるそれら複数のノズルそれぞれから落下する硝酸ウラニル含有の滴下原液の液滴に、光を照射する光照射手段と、前記光照射手段により照射された液滴の落下状態に応じて、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から各ノズルへの滴下原液の供給量を調節する流量調節器とを有することを特徴とする滴下原液供給装置であり、

(11) 前記滴下ノズル装置が前記(1)～(7)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置である滴下原液供給装置であり、

(12) 前記光照射手段が、周期的に点滅する光を照射するストロボ光照射手段である前記(10)又は(11)に記載の滴下原液供給装置であり、

(13) 前記光照射手段から発せられる光を検知する光センサーと、前記光センサーから出力される検知信号を入力することにより各ノズルから滴下される液滴の流量が同一となるように前記流量調節器を制御する制御手段とを有する前記(10)～(12)のいずれか一つに記載の滴下原液供給装置であり、

(14) アンモニア水溶液貯留槽に貯留されたアンモニア水溶液に、滴下原液貯留槽から供給される滴下原液を滴下する一基又は複数のノズルを備えた滴下ノズル装置における一基又はそれら複数のノズルそれぞれから滴下される滴下原液の液滴が落下する落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能なアンモニアガス噴出手段を備えて成ることを特徴とする液滴表面固化装置であり、

(15) 前記滴下ノズル装置が前記(1)～(7)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置である液滴表面固化装置であり、

(16) 前記アンモニアガス噴出手段から噴出されたアンモニアガスを排出するアンモニアガス排出手段を備えて成り、前記アンモニアガス排出手段は、前記液滴の落下行路を中にして前記アンモニアガス噴出手段とは反対側の位置に設けられることを特徴とする前記(14)又は(15)に記載の液滴表面固化装置であり、

(17) 前記アンモニアガス噴出手段は、前記液滴の落下行路に向けてアンモニアガスを噴出可能な複数のアンモニアガス噴出口を有し、前記複数のアンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量を調節可能であることを特徴とする前記(14)～(16)のいずれか一つに記載の液滴表面固化装置であり、

(18) 前記アンモニア水溶液貯留槽は、ノズルの先端部からアンモニア水溶液貯留槽内に貯留されたアンモニア水溶液の液面までの距離が一定となるように、貯留するアンモニア水溶液溢流手段を備えてなる前記(14)～(17)のいずれか一つに記載の液滴表面固化装置であり、

(19) ノズルの先端から前記アンモニアガス噴出口の上端までの高さが、10～40 mmであり、ノズルの先端から落下する液滴の行路である滴下行路から前記アンモニアガス噴出口先端までの最短距離が、3～15 mmであり、アンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量が、3～25 L/minであることを特徴とする前記(14)～(18)までのいずれか一つに記載の液滴表面固化装置であり、

(20) 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下ノズル装置におけるノズルから滴下した液滴を受け入れるアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽内のそのアンモニア水溶液中で、前記液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記アンモニア水溶液貯留槽の底部からその内部に供給するアンモニア水溶液循環路を備えてなることを特徴とするアンモニア水溶液循環装置であり、

(21) 前記滴下ノズル装置が前記(1)～(7)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置であるアンモニア水溶液循環装置であり、

(22) 前記アンモニア水溶液貯留槽の側面部および底部には、それぞれ側面部開口部および底部開口部が形成され、前記アンモニア水溶液供給手段は、前記側面部開口部と前記底部開口部とを連結するアンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えて成ることを特徴とする前記(20)又は(21)に記載のアンモニア水溶液循環装置であり、

(23) 前記側面部開口部には、前記アンモニア水溶液貯留槽内に存在する固形分が前記アンモニア水溶液循環用配管に流入することを阻止する流入防止手段が設

けられていることを特徴とする前記(22)に記載のアンモニア水溶液循環装置であり、
(24) 前記アンモニア水溶液貯留槽の底面部には、取出配管と、前記取出配管を開閉可能にする開閉手段とが設けられていることを特徴とする前記(20)～(23)のいずれか一つに記載のアンモニア水溶液循環装置であり、
(25) 前記(1)～(7)のいずれか一つに記載の滴下ノズル装置、前記(8)又は(9)に記載の滴下原液回収装置、前記(10)～(13)のいずれか一つに記載の滴下原液供給装置、前記(14)～(19)のいずれかに一つに記載の液滴表面固化装置及び前記(20)～(24)のいずれか一つに記載のアンモニア水溶液循環装置のいずれかを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

[0030] 前記(1)の滴下ノズル装置によると、一つの加振器で複数の滴下ノズルを振動させるので、滴下ノズル同士の共振をなくし、他の滴下ノズルの振動の影響を受けることがなくなるので、容易に、滴下粒子の粒径を制御することができる。前記(2)の滴下ノズル装置によると、滴下ノズル毎に、流量調節手段を備えることにより、滴下原液が流れるときの圧力損失の相違を減少させることができるので、その結果、粒径が均一なADU粒子を製造することができる。

[0031] 前記(3)の滴下ノズル装置によると、ノズルの先端部から液滴を滴下する場合、ノズルの先端部にまで滴下原液が流下し、前記先端部に接した状態のまま先端部外に滴下原液が流下し、なおも滴下原液が流下するにつれて先端部に付着する滴が膨満して滴の容積が増大し、膨満状態の液の重量がノズルの先端部に付着する力よりも勝ると、ノズルの先端部から滴下原液が液滴として落下する。その際、ノズルの先端部に付着しながら膨満していく滴下原液に、滴下原液収容部に収容されているところの、ノズルの内容積よりも大きな内容積を占める一定量の滴下原液に起因する流体圧が、加わる。つまり、ノズルの先端部に付着する滴下原液に一定量の静水圧が加わる。その結果、連続して落下しようとする膨満状態の液滴に、常に同じ静水圧が加わるから、連続して落下する液滴は、同じ容積となる。ノズルから連続的に、同じ体積の液滴が落下するので、これらの液滴から同一の大きさにADU粒子が形成される。この発明においては、前記滴下原液収容部は、ノズルの先端部に付着する液滴に一定の静水圧を印加する加圧手段の作用をなす。

- [0032] 前記(4)の滴下ノズル装置によると、前記(3)に記載の技術的効果に加えて、滴下原液収容部が前記ノズルの水平断面積よりも大きな水平断面積を有するので、ノズルの内容積よりも大きな内容積であることが必要な滴下原液収容部の高さ寸法を大きく取る必要がなくなる。
- [0033] 前記(5)の滴下ノズル装置によると、前記(3)又は(4)に記載の効果に加えて、滴下原液収容部から配管を介してノズルに滴下原液を送液する場合に比べ、配管を使用することによる圧力損失を生じることなく、滴下原液収容部からノズルに滴下原液を送液することができ、圧力損失を生じない分、粒子径がそろったADU粒子が形成される。
- [0034] 前記(6)の滴下ノズル装置によると、ノズルの先端部にエッジが形成されているので、ノズルの先端部と液滴とを円滑に分離することができるため、粒子径がそろったADU粒子を形成することができる。
- [0035] 前記(7)の滴下ノズル装置によると、実質的に定量かつ無脈動で液体を供給するので、滴下時の液滴径の大きさに偏差が生じることがない。したがって、粒子径がそろったADU粒子を製造することができる。
- [0036] 前記(8)の滴下原液回収装置によると、まず、ノズルから液滴を滴下し終わってから新たに調製された滴下原液を前記ノズルから液滴として滴下する場合に、前回の滴下操作において原液移送配管中に残存した硝酸ウラニルを含有する滴下原液を残存滴下原液受器に受ける。仮に残存滴下原液受器に収容された滴下原液をノズルからアンモニア水溶液に滴下すると、前回の滴下操作から今回の滴下操作までの時間経過により原液移送配管中に残存した滴下原液はその粘度が変化してしまっているので、真球に近い重ウラン酸アンモニウム粒子を形成することができない。しかしながら、この滴下原液回収装置によると、前記残存滴下原液受器に収容された残存滴下原液を、新たに調製された滴下原液に混合して再利用することにより、新たな滴下原液と残存滴下原液との混合原液を再度温度制御することにより粘度調整を適正に行うことができる。それ故に、真球度、外径、内部組織などにおいて、問題のない均質なADU粒子を高い歩留まりで製造することができる。
- [0037] 前記(10)の滴下原液供給装置においては、硝酸ウラニル含有の滴下原液が複数

のノズルに供給される。複数のノズルから、滴下原液が連続的に滴下される。連続的に滴下される滴下原液に光照射手段により光が照射される。光を照射された液滴の落下状態を視覚により、又は光センサーにより検知し、液滴の落下状態に応じて流量調節器を調節することにより、各ノズルから落下する液滴の体積を調節する。これによって、各ノズルから落下する液滴の体積を均一にすることができる。

[0038] 前記光照射手段により光を照射された液滴の滴下状態を光センサーで検知する場合には、各ノズルから滴下される液滴列毎に光センサーが配置される。

[0039] 光照射手段により光が照射されている状態のところに液滴が落下すると、液滴により光が遮られるので光センサーは検知信号を制御手段に出力する。制御手段は、液滴列毎に配置されている光センサーから出力される検知信号に基づき同じ時間に液滴が光センサに到達する光を遮っているか否かを判断し、また液滴が光を遮る時間を計測することにより、いずれのノズルから落下する液滴と他のノズルから落下する液滴との落下状態が異なるかを判断する。制御手段は、各ノズルから落下するいずれの液滴も同じタイミングで落下するように、流量調節器を自動制御する。

[0040] 光照射手段がストロボ光照射手段であるときには、次のようにして流量調節器が制御される。

[0041] 上記したのと同様にしてノズルから滴下される液滴に、光照射手段であるストロボ光照射手段により、周期的に点滅する光(ストロボ光とも称される。)が照射される。ノズルから順次に滴下される複数の液滴がノズルの周波数と同期をとった周波数のストロボ光に照射されると、ノズルから滴下している複数の液滴が静止状態であるかのように観察される。複数のノズルから同じタイミングで滴下されるいずれの液滴も同じ高さ位置にあると観察されるときには、複数のノズルがいずれも同じ体積を有しているから、複数のノズルから滴下されるいずれの液滴も、同じ粒径であると判断することができる。ところが、複数のノズルから同じタイミングで滴下される複数の液滴が同じ高さ位置にないと観察されるときには、複数のノズルから滴下される複数の液滴につきその体積が相違すると判断される。そのときには、流量調節器を操作することによりノズルに供給される滴下原液の供給量が調整されて、複数のノズルのいずれからも同じタイミングでいずれの液滴も同じ粒径をもって滴下されるようになる。

- [0042] したがって、この発明によると、粒径が一様なADU粒子を容易に製造することができるADU粒子製造装置を提供することができる。
- [0043] 前記(14)の液滴表面固化装置によると、一基又は複数のノズルから各々滴下される硝酸ウラニル含有の滴下原液の一連の液滴に、アンモニアガス噴出手段からアンモニアガスを噴出するから、滴下ノズル毎に落下する液滴に均一にアンモニアガスと接触させることになり、しかも、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することもないため、真球性の良い二酸化ウラン粒子を得ることができる。
- [0044] 前記(16)の液滴表面固化装置によると、アンモニアガス排出手段が噴出されたアンモニアガスを排出することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなるので、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することがより一層なくなる。また、このアンモニアガス排出手段が設けられていると、アンモニアガス排出手段が存在しない場合には上昇するアンモニアガスがノズル先端に到達することによりノズル先端における硝酸ウラニルとアンモニアガスとが反応してノズルのつまりを生じるといった問題が、解消される。
- [0045] 前記(17)の液滴表面固化装置によると、前記複数のアンモニアガス噴出口は、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能であることにより、アンモニアガスの圧力損失が異なる場合でも、アンモニアガスの噴出状態を一定に保つことができる。
- [0046] 前記(18)の液滴表面固化装置によると、アンモニア水溶液貯留槽にアンモニア水溶液溢流手段が設けられているので、アンモニア水溶液貯留槽内のアンモニア水溶液に液滴が滴下されるにつれてアンモニア水溶液の液面が上昇しても液面がある位置に達すると、更に液滴が滴下されても液滴により押し上げられるアンモニア水溶液がアンモニア水溶液溢流手段により排出されるのでそれ以上にアンモニア水溶液の液面が上昇することがない。換言すると、アンモニア水溶液貯留槽内に、アンモニア水溶液溢流手段によりアンモニア水溶液が溢流する液面高さに一致する液面となるように、アンモニア水溶液を貯留しておくと、滴下ノズル装置におけるノズルの先端からアンモニア水溶液の液面までの距離が常に一定に保持される。前記距離が一定に保持されていると、ノズルからアンモニア水溶液に向かって落下する液滴がアンモニ

アガスに接触する条件は常に一定となるから、ノズル先端から落下してアンモニア水溶液の液面に到達するまでの、液滴における硝酸ウラニルとアンモニアガスとの反応が常に一定に行われることになるので、アンモニア水溶液に着水する液滴粒子における重ウラン酸アンモニウム被膜生成条件が一定になり、ひいては変形のない均一なADU粒子が製造されることになる。

[0047] 前記(19)の液滴表面固化装置によると、ノズルの先端からアンモニアガス噴出口の上端までの高さが10〜40mmに、また滴下行路から前記アンモニアガス噴出口先端までの最短距離が3〜15mmに設計されている場合に、アンモニアガス噴出口からアンモニアガスを3〜25L/minの流速で噴出させることにより、ノズル先端から落下する液滴がアンモニア水溶液に到達するまでの行程において、液滴表面で硝酸ウラニルとアンモニアとの反応がいずれの液滴についても一様に起こり、重ウラン酸アンモニウム皮膜が均一に形成された液滴となってアンモニア水溶液表面に到達する。液滴表面に均一な重ウラン酸アンモニウム皮膜が形成されることにより、最終的に真球で均一な品質のADU粒子が製造されることになる。

[0048] 前記(20)のアンモニア水溶液循環装置によると、ADU粒子が上昇流動可能な状態となることにより、アンモニア水溶液貯留槽内部でADU粒子は流動状態となり、ADU粒子同士が堆積することがなくなる。その結果として、ADU粒子の変形が防止される。また、アンモニア水溶液中で流動する液滴内での硝酸ウラニルとアンモニアイオンとの反応が進行すると、液滴表面の外部近傍に存在するアンモニアイオンの濃度が減少するが、アンモニア水溶液を流動状態にすることによりその濃度減少を補うようにアンモニウムイオンが液滴表面に供給される。また、アンモニア水溶液が循環状態になっているので、液滴表面には常に新鮮なアンモニウムイオンが供給され、したがって、液滴内部における硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとの反応が効率よく進行する。これらの理由から、ADU粒子の変形がなく、内部欠陥等の存在しないADU粒子を効率的に生産することができる。

[0049] また、前記(22)のアンモニア水溶液循環装置によると、アンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えることで、ポンプによりアンモニア水溶液が底部開口部からアンモニア水溶液貯留槽内に供給さ

れる。供給されたアンモニア水溶液は、底部に溜まるADU粒子を下方より上方へと押し上げることにより、アンモニア水溶液中で形成されるADU粒子が流動循環して堆積することがない。また、循環するアンモニア水溶液中でADU粒子が循環することによりADU粒子表面に新鮮なアンモニウムイオンが接触することになるので、粒子中心まで重ウラン酸アンモニウムとなったADU粒子を効率よく製造することができる。

[0050] さらに、(23)記載のアンモニア水溶液循環装置によると、流入防止手段が設けられていることで、アンモニア水溶液循環用配管内に粒子の破片乃至断片等の固形物が混入することがなく、効率良く、貯留槽内にアンモニア水溶液を供給することができる。

[0051] そして、(24)記載のアンモニア水溶液循環装置によると、アンモニア水溶液貯留槽の底部に溜まったADU粒子を、重力によって、アンモニア水溶液貯留槽の取出配管を経て、特別な設備を使用せずにアンモニア水溶液貯留槽外部に取り出すことができる。また、開閉手段により、任意にADU粒子をアンモニア水溶液貯留槽外部に取り出すことができる。

[0052] 上記(25)のADU粒子製造装置によると、滴下ノズル装置、滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、液滴表面固化装置、及びアンモニア水溶液循環装置のいずれか一つの装置を備えているので、真球度の良好な粒径のそろったADU粒子を製造することができる。

図面の簡単な説明

[0053] 以下に説明するこれらの図面は設計図面ではなく、滴下ノズル装置等およびADU粒子製造装置の機能および構造等を説明するための図面である。

[0054] [図1]図1は、本発明の一例であるADU粒子製造装置の部分図である。

[0055] [図2]図2は、本発明におけるADU粒子製造装置が備える振動ノズルの一例を示す図である。

[0056] [図3]図3は、本発明におけるADU粒子製造装置の一例を示す系統線図である。

[0057] [図4]図4は、本発明におけるADU粒子製造装置が備える流量調節弁の一例である玉型弁の断面を表す図である。

- [0058] [図5]図5は、この発明の一例であるADU粒子製造装置を示す概略図である。
- [0059] [図6]図6は、この発明の一例である滴下ノズル装置の一部を示す概略図である。
- [0060] [図7]図7は、この発明の一例であり、先端部にエッジを有する滴下ノズル装置の一部を示す拡大図である。
- [0061] [図8]図8は、本発明に係る滴下ノズル装置を示す概略図である。
- [0062] [図9]図9は、二酸化ウラン粒子の粒径を測定する方法を示している。
- [0063] [図10]図10は、この発明のADU粒子の製造装置の一例を示す図である。
- [0064] [図11]図11は、この発明において用いる残存滴下原液受器の一例を示す図である。
- [0065] [図12]図12は、この発明に係るADU粒子製造装置の一例を示す説明図である。
- [0066] [図13]図13は、この発明に係るADU粒子製造装置により、各ノズルより滴下された液滴高さを一定に保持した状態を示す図である。
- [0067] [図14]図14は、この発明に係るADU粒子製造装置の他の例を示す説明図である。
- [0068] [図15]図15は、図14に示されるADU粒子製造装置における光源、光電変換素子及び制御部を示す説明図である。
- [0069] [図16]図16は、パルス信号列を示す説明図であり、(a)は、図14に示されるADU粒子製造装置において、各ノズルから同じ体積の液滴が同期して落下しているときに検出されるパルス信号列を示す説明図であり、(b)は、図14に示されるADU粒子製造装置において、各ノズルから異なる体積の液滴が同期せずに落下しているときに検出されるパルス信号列を示す説明図である。
- [0070] [図17]図17は、この発明に係るADU粒子製造装置を示す概略図である。
- [0071] [図18]図18は、アンモニアガス噴出手段およびアンモニアガス排出手段を拡大した斜視図である。
- [0072] [図19]図19は、アンモニアガス噴出手段を示す概略図である。
- [0073] [図20]図20は、アンモニアガス噴出手段の変形例を示す概略図である。
- [0074] [図21]図21は、本発明に係るADU粒子製造装置を示す概略図である。
- [0075] [図22]図22は、本発明に係るADU粒子製造装置の変形例を示す概略図である。
- 発明を実施するための最良の形態

- [0076] [第1の形態]

図1に、本発明の滴下ノズル装置を備えたADU粒子製造装置の第1の形態を示す。図1に示されるように、ADU粒子製造装置1は、滴下ノズル装置2、及びアンモニア水溶液貯留槽3を備える。

[0077] 滴下ノズル装置2は、複数の、例えば図1に示されるように4本のノズル4と、図2に示されるように1基の加振器5とを備える。さらに具体的に述べると、図2に示されるように、滴下ノズル装置2は、それぞれ垂直に、かつ所定間隔を設けて互いに平行に配列されたところの、互いに同形状の円筒管状をなす4本のノズル4と、このノズル4を保持する保持部材6と、この保持部材6を上方から支持する支持部材7と、この支持部材7を介してノズル4に垂直方向の振動を与える加振器5と、前記ノズル4それぞれに結合されたところの、滴下原液移送路の一例である滴下原液供給管8とを備える。

[0078] ノズル4は、管状に形成されてなる。前記ノズル4の軸線に直交する断面形状としては、円形、楕円形または多角形等を挙げることができ、特に、円形であるのが好ましい。前記ノズル4の開口部における水平断面の形状としては、内径が、0.2mm〜3mmの円形であるのが好ましい。前記内径が0.1mm未満であると、ノズルが目詰まりを起こすことがある。また、前記内径が3mmより大きいと液滴が大きくなり、形成されるADU粒子の大きさが大きくなりすぎる可能性がある。前記ノズル4の材質としては、硝酸ウラニル含有の滴下原液により悪影響を受けず、耐腐食性を有する材質であれば、特に、制限はなく、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

[0079] 前記4本のノズル4は、図1に示されるように横一列に配列してもよいが、例えば平面上に仮想的に形成される正方形の各頂点に各ノズル4が立設する配置関係を有していても良い。

[0080] 図2に示されるように、ノズル4に結合される滴下原液供給管8は、滴下原液を貯留するタンク(図示せず。)に結合され、図示されない適宜の送液手段、例えば、ポンプによりタンク内の滴下原液がノズル4に送液されるようになっている。前記滴下原液は、例えば、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かした硝酸ウラニル溶液を調製し、この硝酸

ウラニル溶液と、純水とポリビニルアルコール樹脂等の増粘剤等とを混合して成る混合液とを混合し、攪拌して得られる。なお、前記増粘剤としては、ポリビニルアルコール、アルカリ条件下で凝固する樹脂、ポリエチレングリコール及びメトローズ等を挙げることができる。滴下原液自体の粘度等は、滴下粒子の所望粒径に応じて適宜に決定される。滴下原液の粘度の一例は、10℃で10〜500cPsである。所定の温度に冷却、維持されて粘度の調整が行われた滴下原液は、ノズル4に送出される。

[0081] 前記加振器5は、支持部材7を介して各ノズル4それぞれに垂直方向に所定の振動数で振動を与えることができるように構成され、例えば電磁式振動発生器、機械式振動発生器、及び超音波振動発生器等を採用して形成することができる。この加振器5がノズル4に与える振動数としては40〜200Hzが好ましい。振動数が前記範囲外であると、所定外径を有する良好な滴下粒子をノズル4の下端開口部から滴下させることができないことはないが、振動数が前記範囲内にあるほうが容易に所定外径の良好な滴下粒子を滴下させることができる。

[0082] 図1に示されるように、アンモニア水溶液貯留槽3は、その内部に貯留されたアンモニア水溶液に含まれるアンモニアと前記ノズル4から滴下される滴下原液の滴下粒子中に含まれる硝酸ウラニルとを反応させて重ウラン酸アンモニウムを形成する反応を行う槽である。アンモニア水溶液貯留槽3は、半球状に湾曲した底部と円筒形をした胴部とからなり、アンモニア水溶液貯留槽3の内部の所定高さまでアンモニア水溶液を貯留する。アンモニア水溶液貯留槽3は、その内部に貯留されたアンモニア水溶液の液面よりもさらに上方にアンモニア水溶液貯留槽3の胴部が延長されている。このアンモニア水溶液貯留槽3の胴部には、貯留されるアンモニア水溶液10の液面よりも上方に位置するように、アンモニアガス供給管9が配置され、このアンモニアガス供給管9から供給されるアンモニアガスによって、アンモニア水溶液貯留槽3の内部であってアンモニア水溶液10の液面より上方の雰囲気、アンモニアガスとなる。

[0083] このアンモニア水溶液貯留槽3の材質としては、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材質であれば、特に制限がなく、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

- [0084] なお、前記アンモニア水溶液貯留槽3の大きさとしては、特に制限はなく、所望に応じて決めることができる。このアンモニア水溶液貯留槽3の形状についても、図1に示される形状に限定されず、種々の形状を採用することができる。
- [0085] 前記アンモニアガス供給管9は、前記ノズル4から滴下された液滴の表面をアンモニア水中への落下前にゲル化するため、アンモニアガスを前記アンモニア水溶液貯留槽3内のアンモニア水溶液の液面より上方の空間に供給するノズルである。
- [0086] したがって、前記アンモニアガス供給管9の先端開口部は、アンモニア水溶液貯留槽3の内部に向けて開口し、その他端は、例えば、アンモニアガスを充填したガスボンベ等のガス供給手段(図示せず。)に接続される。
- [0087] なお、前記アンモニアガス供給管9の取り付け位置は、アンモニア水溶液貯留槽3内におけるアンモニア水溶液の液面上方の空間をアンモニアガス雰囲気にすることができる限り、特に制限はない。
- [0088] 以上構成のADU粒子製造装置により、次のようにして、ADU粒子が製造される。
- [0089] アンモニア水溶液貯留槽3内に所定量のアンモニア水溶液を装入する。4本のノズル4から滴下原液を前記アンモニア水溶液に滴下する。このとき、図2に示すように、加振器5により4本のノズル4に同時に同一振動数の振動が加えられる。その結果、同一に振動する4本のノズル4から滴下される原液の流量が等しければ、実質的に同一の粒径を有する液滴が落下する。
- [0090] 後述するこの発明の液滴表面固化装置をADU粒子製造装置に組み込んでおくのが、好ましい。そうすると、ノズル4から滴下された滴下粒子は、ノズル4からアンモニア水溶液迄の落下行程中、アンモニアガス供給管61から噴出するアンモニアガスが吹き付けられる。吹き付けられたアンモニアガスにより硝酸ウラニルから成る滴下粒子の表面が一部ゲル化する。アンモニア水溶液に投下されたゲル化した滴下粒子は、表面がゲル化した滴下粒子内に存在する硝酸ウラニルとアンモニアとがさらに反応を継続して重ウラン酸アンモニウムを形成する。
- [0091] 所定量の滴下原液の滴下が終了すると、アンモニア水溶液貯留槽3内のアンモニア水を除去し、適宜の手法、たとえばアンモニア水溶液貯留槽3を傾斜させ、又は反転させることにより、又はアンモニア水溶液貯留槽3内の内容物を掻きだすことにより

、又はアンモニア水溶液貯留槽3内の内容物を吸引除去することにより、生成したADU粒子を取り出す。

[0092] 以上にこの発明の一実施例について説明したが、この発明は前記例に限定されるものではなく、この発明の範囲内において適宜に設計変更をすることができる。

[0093] 例えば、加振器5による滴下ノズルの振動方向は垂直方向に限らず、水平方向であっても良い。滴下ノズルの本数についても特に制限がなく、ADU粒子の製造能力を考慮して、滴下槽の大きさに応じて滴下ノズルの本数を決定することができる。滴下ノズルの配置についても適宜に決定することができる。

[0094] ADU粒子の製造においては、複数の滴下ノズルに1基の加振器により同一の振動を与えることにより実質的に真球に形成されたADU粒子を製造することができることを、上記説明で明らかにしたが、外径のそろったADU粒子を製造するには滴下ノズルから滴下される液滴の体積を適正に制御することも好ましい。

[0095] そこで、この発明に係る滴下ノズル装置及びADU粒子製造装置においては、滴下ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段を設けることも好ましい。

[0096] このように流量調節手段を設けることにより、各々の滴下ノズルから滴下される滴下原液の滴下量を制御することができ、さらに、滴下量を一樣にすることができる。その結果、ADU粒子の粒径のばらつきを抑えることができる。

[0097] 図3に、ADU粒子製造装置の他の一例を示す。

[0098] 図3において、1はADU粒子製造装置、2は滴下ノズル装置、8は滴下原液供給管、11は流量調節手段、12はセパレータおよび13は配管を示している。前記滴下ノズル装置2、滴下原液供給管8については、図1及び図2に示されるADU粒子製造装置における滴下ノズル装置2及び滴下原液供給管8と同様であるので、その詳細な説明を省略する。

[0099] 前記流量調節手段11は、流量調節弁(図示せず。)と流量計(図示せず。)とを備える。該流量調節手段11は、滴下原液タンクに貯留された滴下原液を前記ノズル4に供給するときに、滴下原液の流量を調節する手段である。この流量調節手段を用いると、例えば、各滴下ノズルから滴下された滴下原液の高さ方向の位置を目視しな

がら、前記流量調節弁を操作することにより、流量を調節することができる。

[0100] 前記流量調節手段11は、前記ノズル4の各々に対応するように、一つずつ配置されている。

[0101] 前記流量調節手段11は、それぞれに対応する滴下原液供給管8を介してノズル4に接続し、また、配管13を介して、滴下原液タンク(図示せず。)と接続する。また、前記配管13の途中に、公知のセパレータ12を配置してもよい。

[0102] 前記流量調節弁としては、公知の流量調節弁を用いることができ、例えば、玉型弁、バタフライ弁またはサンダース弁等を挙げることができる。

[0103] 前記流量調節弁の一例として、玉型弁を図4に示す。

[0104] 図4で示される玉型弁14は、ハンドル15、弁棒16、ふた17、弁抑え18、弁19および弁箱20を備える。

[0105] この流量調節器14により、複数の滴下ノズルから滴下される液滴の送出量を一定にすることができるので、好適である。

[0106] 前記流量計としては、公知の流量計を用いることができ、例えば、面積式流量計、容積式流量計、タービンメーターまたはうず式流量計等を挙げることができる。

[0107] 前記配管13は、耐腐食性を有すれば、特に制限はなく、ステンレス鋼製、アルミニウム合金製、ポリエチレン製、ポリプロピレン製、PVC製、PET製等の配管を挙げることができる。

[0108] 本発明におけるADU粒子製造装置を用いて、例えば、以下のようにしてADU粒子を製造することができる。

[0109] 前記滴下原液タンク内の滴下原液を、ポンプ等により、送液する。

[0110] 前記滴下原液は、流量調節手段で、所望の流量に調節されて、滴下ノズルに達する。

[0111] このとき、1本のノズルあたり、滴下原液の流量は、好ましくは $5\sim 70\text{cm}^3/\text{min}$ になるように、調節される。

[0112] 前記滴下原液の滴下時の流量が1本のノズルあたり $5\text{cm}^3/\text{min}$ よりも少ないと、所望量のADU粒子を得るために滴下すべき量の滴下原液を滴下するのに時間がかかってしまい、その結果、生産効率が悪くなることがある。

- [0113] また、前記滴下原液の滴下時の流量が1本のノズルあたり $70\text{cm}^3/\text{min}$ よりも多いと、滴下原液が粒子状にならず、連続体になってしまうことがあり、この場合、滴下粒子を得ることができず、その結果、球状でなく、棒状のADU粒子が生成されることがある。
- [0114] 滴下ノズルに達した滴下原液は、加振器5により振動しているノズル4からアンモニア水溶液貯留槽3に落下する。アンモニア水溶液貯留槽3に落下してADU粒子が形成される作用については、図1に示されるADU粒子製造装置の場合と同じである。
- [0115] 以上、この第1の形態について説明したが、以下の形態のいずれにおいても滴下ノズル装置が装備するノズルの基数は、複数基に限らず1基であってもよい。ノズルが1基であるときには、他の設備はノズルが1基であることに対応することになる。例えばノズルが1基であると流量調節手段における流量調節弁及び流量計は1基になる。
- [0116] [第2の形態]
- 図5に、この発明の一例である滴下ノズル装置を含むところの、この発明の一例であるADU粒子製造装置を示す。この発明に係るADU粒子製造装置は、図5に記載されたADU粒子製造装置に限られることはない。
- [0117] 図5に示されるADU粒子製造装置1は、硝酸ウラニルを含有する滴下原液からADU粒子を製造することができる。図5に示されるように、このADU粒子製造装置1は、滴下ノズル装置2、及びアンモニア水溶液貯留槽3を有する。
- [0118] この発明の一例である滴下ノズル装置2は、滴下原液を液滴として滴下するように形成される。図5に示されるように、滴下原液を滴下するノズル4と、滴下原液を貯蔵する滴下原液貯留槽25からポンプPを介して移送される滴下原液を収容する滴下原液収容部の一例である滴下原液収容槽26とを備えて成る。この滴下原液収容槽26は、前記ノズル4の内径より大きい水平断面寸法を有する。なお、この滴下ノズル装置2は、前記第1の形態にて説明された加振器5を有していても良い。
- [0119] 前記滴下原液貯留槽25は、硝酸ウラニル含有の滴下原液を収容し、ポンプPの駆動により一定量の滴下原液を滴下原液収容槽26に移送するようになっている。
- [0120] 滴下原液収容槽26は、一定量の滴下原液を収容するように形成される。したがって、滴下原液収容槽26内に一定の液面高さとなるように滴下原液が収容される。そ

のために、たとえば滴下原液収容槽26内の一定液面高さ以上に成るほどに滴下原液が供給される場合には、たとえば、一定液面高さを超える滴下原液がオーバーフローして排出される排出管(図示せず。)が、この滴下原液収容槽26に取り付けられている。

- [0121] 滴下原液収容槽26の内部形状としては、図6に示されるように、水平断面が円形をなす略円筒形の内部形状を挙げることができる。滴下原液収容槽26の内部形状を略円筒形にする場合、滴下原液収容槽26の製造が容易である。したがって、製造の容易性という観点から、多くの場合には、この滴下原液収容槽26の内部形状は円筒形に形成されている。もっとも、滴下ノズル装置2及びこの滴下ノズル装置2を組み込んでなるADU粒子製造装置1における設計事情によっては、この滴下原液収容槽26の内部形状は、他の形状たとえば、水平断面が方形又は長方形である角筒体形状、水平断面が半円形を成す筒体形状、水平断面が三角形をなす筒体形状等であっても良い。
- [0122] 滴下原液収容槽26を構成する材料としては、滴下原液の成分と化学反応を起こさず、体積変化を起こさない材質であればよく、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。
- [0123] 円筒形の内部形状を有する滴下原液収容槽26のその大きさについては、後述する。
- [0124] 前記ノズル4は、その先端部から滴下原液を滴下可能であるように形成される。ノズル4の内部形状は通常円筒形であるが、場合によっては、他の形状たとえば、水平断面が方形又は長方形である角筒体形状、水平断面が半円形を成す筒体形状、水平断面が三角形をなす筒体形状等であっても良い。
- [0125] 前記第1の形態におけるのと同様に、このノズル4から滴下される液滴は、通常、その直径が0.2〜4mmである球状である。なお、このノズル4の先端開口部で膨満しつつ球状に形成される滴下原液の滴を液滴又は滴下球と称することがある。このように微小で、前記粘度を有する液滴を前記ノズル4の先端開口部から滴下するために、このノズル4が円筒管状の内部形状を有するときに、その好適な内径は、通常、0.

2〜3mmである。また、このノズル4は、通常、直管であるが、場合によっては曲管であつてもよい。ただし、この発明においては、ノズル4の先端開口部から滴下される多数の液滴が圧力損失を受けた結果としてその直径が様々になってしまうことを防止しようとするのであるから、ノズル4における滴下原液の流通長さをあまり長くしないほうが好ましい、このような観点から、直管であるノズル4の軸線方向長さは、好適には0.1〜2cmである。ノズル4の軸線方向長さが2cmを超えると加圧力により液滴をノズル4の先端から吐出させなければ成らなくなることがあるので、装置の複雑化を招くことがある。ノズル4の軸線方向長さが0.1cm未満であると、ノズル4の先端開口部から液滴の吐出が円滑に行われないことがある。

[0126] また、前記ノズル4は前記滴下原液収容槽26の底部に直結されていてもよく、また、ノズル4の後端と前記滴下原液収容槽26とを連絡管(図示せず。)で連結していてもよい。もっとも、滴下原液収容槽26からノズル4の先端開口部までの距離を短くしてできるだけ圧力損失を小さくするという観点からすると、ノズル4の後端部を前記滴下原液収容槽26に直結された状態であるのが、望ましい。ここで、直結というのは滴下原液収容槽26に形成された排出口にノズル4の後端開口部が位置していることを意味し、この意味で滴下原液収容槽26とノズル4とが直結している限り、滴下原液収容槽26とノズル4とが一体に形成されていてもよく、また別々に製造された滴下原液収容槽26とノズル4とを機械的に結合することにより一体化されていても良い。

[0127] 前記ノズル4を形成する材質は、前記第1の形態と同様である。

[0128] たとえば、図7に示されるように、前記ノズル4の先端部4Aには、エッジ4Bを形成しておくのが、好ましい。なお、前記ノズル4の先端部4Aにエッジ4Bを形成しておくのが好ましいことは、この例に限らず、この発明に係る滴下ノズル装置における全てのノズルについて当てはまる。このエッジ4Bは、ノズル4の先端開口部に形成される滴下球24のエッジ4Bからの分離を促進する機能を有し、換言すると、滴下球24がノズル4の先端から分離する際の「キレ」を良好にする。エッジ4Bの分離促進機能についての合理的理由は、未だ解明にされていないが、推測として、滴下球24がノズル4の先端開口部に付着している場合に、先端開口部にエッジ4Bが形成されていることにより、滴下球24の付着面積を小さくすることができ、その結果、落下しようとする滴下球

24を引き止めようとする力がエッジ4Bにより小さくなるものと、考えられる。なお、エッジ4Bの形状は、図7に示されるように、ノズル4の先端開口部に環状に、かつそのノズル4の外周面がノズル4の内周面に収斂するように縦断面が楔型に形成されるのが好適であるが、鋸歯状に形成されていても良い。

[0129] 上述したように滴下原液収容槽26及びノズル4を設計すると、一定の直径を有する滴下球をノズル4の先端開口部に形成することができ、流粒子径のそろったADU粒子を均一に製造することができるという目的をよく達成することができる。

[0130] この発明におけるノズルにつき、一基の前記滴下原液収容槽26に一本のノズル4が結合されていてもよいし、一基の前記滴下原液収容槽26に複数のノズル4が結合されていてもよい。

[0131] このアンモニア水溶液貯留槽3は、前記第1の形態におけるアンモニア水溶液貯留槽3と同様の構成を有する。

[0132] 図5に示されるように、アンモニア水溶液貯留槽3と、アンモニアガス供給管9とを有する。

[0133] 以下において、図5に示される滴下ノズル装置及びこれを組み込んだADU粒子製造装置の作用を説明する。

[0134] 先ず、初期状態として、アンモニア水溶液貯留槽3に、所定量のアンモニア水溶液が貯留される。アンモニアガス供給管9により、アンモニア水溶液貯留槽3におけるアンモニア水溶液の液面上方に、アンモニアガス雰囲気形成されている。

[0135] 滴下原液貯留槽25からポンプPを介して滴下原液収容槽26に滴下原液を送液する。滴下原液収容槽26では所定量の滴下原液を収容する。滴下原液収容槽26に収容された滴下原液は、ノズル4に移送される。ノズル4の先端開口部から、滴下原液が滴々と落下する。

[0136] このとき、ノズル4の先端開口部から滴下原液が流下することにより徐々に膨満する滴下球24が形成され、この滴下球24の重量が滴下球24をノズル4の先端開口部に付着する力に打ち勝つと、滴下球24が液滴として落下する。ノズル4の先端開口部で形成される滴下球24が成長して落下するまでの間、この滴下球には、滴下原液収容槽26に収容されている滴下原液による一定の静水圧が加わり、しかも滴下原液収

容槽26とノズル4とによる圧力損失が少ないので、ノズル4の先端開口部から落下する滴下原液は一定の体積をもって落下することになる。

[0137] 液滴が落下することにより滴下原液収容槽26内の滴下原液における体積減少分は、滴下原液貯留槽25からポンプPを介して補充される。また、滴下原液収容槽26内の滴下原液の容積が所定容積を超えるときには、その所定体積を超える分の滴下原液が図示しない排出口から排出される。したがって、ノズル4から滴下原液が液滴として排出されても、この滴下原液収容槽26には常に所定量の滴下原液が収容されることになり、これによってノズル4の先端開口部には一定の静水圧が加わることになる。

[0138] ノズル4から落下した液滴は、アンモニア水溶液貯留槽3内を、アンモニア水溶液に向かって落下する。

[0139] 落下する液滴は、アンモニア水溶液の液面上方に形成されているアンモニアガス雰囲気により、液滴の表面がゲル化される。前記ゲル化によつては、滴下原液表面における硝酸ウラニルがアンモニアガスと反応して重ウラン酸アンモニウムを形成し、重ウラン酸アンモニウムの被膜が形成される。その結果、落下する滴下原液がアンモニア水溶液の液面に衝突したときの衝撃による変形が、前記被膜によりある程度防止される。

[0140] 前記アンモニア水溶液貯留槽3のアンモニア水溶液に落下した液滴においては、液滴内の硝酸ウラニルがアンモニアと反応して重ウラン酸アンモニウムが形成される。

[0141] アンモニア水溶液貯留槽3で形成されたADU粒子は適宜の手段により、取り出される。

[0142] 以下に、図5に示される滴下ノズル装置及びこれを組み込んだADU粒子製造装置を使用したADU粒子製造の実施例を示す。

[0143] (実施例1)

図5及び図6に示される滴下ノズル装置2を用いた。ノズル4は、内径0.5mm、長さ15mmの円管形状を有していた。また、滴下原液収容槽26は、内径6mm、長さ12mmの円筒形部材であった。さらに、滴下原液は、酸化ウランを硝酸に溶解した硝酸

ウラニル溶液に、ポリビニルアルコール樹脂等を添加し、混合して得た。この滴下原液の粘度は、約60cPであり、硝酸ウラニル含有滴下原液の濃度は0.7 mole-U/Lであった。

[0144] 前記滴下原液収容槽26に収容されている滴下原液をノズル4の先端開口部から、アンモニア水溶液貯留槽3内のアンモニア水溶液中に滴下した。このアンモニア水溶液のアンモニア濃度は25体積%であった。

[0145] アンモニア水溶液貯留槽3内で滴下原液中の硝酸ウラニルとアンモニアとの反応が十分に進行して重ウラン酸アンモニウムが形成されることによりADU粒子が形成されると、アンモニア水溶液貯留槽3からADU粒子を取り出す。

[0146] このADU粒子から常法にしたがって二酸化ウラン燃料核を製造した。得られた二酸化ウラン燃料核は、平均直径が600 μ mであった。そして、直径の標準偏差は、10 μ m以下であり、真球であると判断された。

[0147] [第3の形態]

この第3の形態は、滴下原液の液滴を滴下する滴下ノズルに、実質的に無脈動かつ一定流量で滴下原液を供給する送液手段を備えてなる滴下ノズル装置及びこれを組み込んだADU粒子製造装置の例である。

[0148] 以下、図8を参照しながらこの発明の一実施形態に係る滴下ノズル装置2について説明する。ただし、図8に記載された滴下ノズル装置2は、この発明の一例であり、この発明に係る滴下ノズル装置2は、図8に記載された滴下ノズル装置2に限られることはない。

[0149] 滴下ノズル装置2は、ノズル4と、加振器5と、送液手段31とを備えてなる。

[0150] ノズル4及び加振器5については、前記第1の形態及び第2の形態におけるノズルと同様である。

[0151] 送液手段31は、前記ノズル4に対して、実質的に無脈動で、かつ一定流量で液体を供給することができるように、形成される。送液手段31としては、例えば、プランジャー型定量ポンプ等を挙げることができる。

[0152] また、送液手段31は、滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽25と接続されている。滴下原液については前記第1の形態及び第2の形態における滴下原液と同様である。

。

[0153] 加振器5によりノズル4に加えられる振動数と送液手段31による滴下原液の送液量とは以下の式(1)で示される関係を有する。

[0154]
$$d^3 = KQ/f \quad \cdots (1)$$

前記式(1)において、 d はノズル4から滴下される液滴の粒径を示し、 f は加振器5によりノズル4に加えられる振動の振動数を示し、 Q は送液手段31により供給される滴下原液の流量を示し、 K は定数である。この式を満たして一定の粒径の液滴を滴下ノズルから滴下させるには、送液手段31により供給される滴下原液の送液量に変動を生じないようにさせる必要がある。換言すると、上記式(1)が満たされるように送液手段31によりノズル4に滴下原液が送液されることになる。ノズル4から滴下する液滴の粒径は、送液手段31から無脈動で送液される滴下原液の送液量と加振器5によりノズル4に加えられる振動の振動数とにより調整される。

[0155] 例えば、加振器5により与えられる振動の振動数は通常、40〜150Hzであり、送液手段31から送り出される滴下原液の送液量は例えば、ノズル数が8本の場合0.1〜1L/minが好適である。

[0156] この形態に係るADU粒子製造装置の作用について以下に説明する。

[0157] 例えば硝酸ウラニルと増粘剤等の添加物とを含有する滴下原液(0.7〜0.9mol-U/L)は、冷却されることにより粘度が滴下原液貯留槽25内で調整される。この粘度の調整後に、滴下原液は、本発明に係る滴下ノズル装置2を用いて、アンモニア水溶液貯留槽3中のアンモニア水溶液に滴下される。

[0158] この際、図8に示されるように、送液手段31を使用して、無脈動で、かつ一定流量で滴下原液が滴下原液貯留槽25からノズル4に送液される。送液されたノズル4には、加振器5によって、所定の振動数の振動が与えられる。振動を与えられたノズル4は、一定の径を有する液滴を滴下する。

[0159] アンモニア水溶液貯留槽3中のアンモニア水溶液へ滴下された液滴は、アンモニア水溶液表面に達するまでの間に、第1の形態及び第2の形態におけるように、アンモニアガス雰囲気中を通過するようにしてもよい。アンモニア水溶液中において液滴中の硝酸ウラニルは、アンモニアと十分に反応し、ADU粒子となる。

[0160] 以下にこの第3の形態についての実施例及び比較例を示す。

[0161] (実施例2)

本実施例における滴下原液は、硝酸ウラニル溶液と水溶性環状エーテル例えばテトラヒドロフルフリルアルコール(以下においてTHFAと称することがある。)とを混合して硝酸ウラニル含有溶液を調製し、一方で、水溶性ポリマー例えばポリビニルアルコールと水とを混合して得られた濃度7.3質量%の水溶性ポリマー水溶液と水溶性環状エーテル例えばテトラヒドロフルフリルアルコールとを混合して水溶性ポリマー溶液を調製し、前記硝酸ウラニル含有溶液と前記水溶性ポリマー溶液とを混合して調製された。調製された滴下原液中のTHFAは、滴下原液全体の45体積%とし、滴下原液中の前記水溶性ポリマー水溶液の割合は、滴下原液全体の17体積%とした。前記水溶性ポリマー水溶液とTHFAとの混合割合は、前記THFAの配合量が、滴下原液中のTHFA全量に対して37体積%となるように調製した。この滴下原液のウラン濃度は、0.76mol-U/Lであった。

[0162] 次に、上記条件で調製された滴下原液を送液手段31としての無脈動定量ポンプ(富士テクノ工業(株)製)を使用して、無脈動かつ一定流量0.2L/minで滴下原液が滴下原液貯留槽25から8本のノズル4に送液される。送液されたノズル4は、加振器5によって、振動数75Hzの振動を与えられる。振動を与えられたノズル4は、一定の径を有する液滴を滴下する。

[0163] アンモニア水溶液貯留槽3中のアンモニア水溶液へ滴下された液滴は、アンモニアと十分に反応し、ADU粒子(ADU粒子)が形成された。

[0164] このADU粒子を熟成、洗浄、乾燥した後、大気中500℃で焙焼し、三酸化ウラン粒子とした。さらに、三酸化ウラン粒子を、水素気流中で還元・焼結されることにより、高密度のセラミック状の二酸化ウラン粒子とした。

[0165] 篩い目開き625 μ mおよび575 μ mで、二酸化ウラン粒子の分級を行った。この分級の結果、粒径575～625 μ mの範囲内に入った二酸化ウラン粒子は、二酸化ウラン粒子全体の99.5%以上であった。

[0166] なお、この実施例で得られた二酸化ウラン粒子の平均粒径は600 μ mであった。なお、粒径の測定方法は、PSA法である。

[0167] PSA法とは、図9に示されるように、フォトダイオード、スリット、光源を使用する方法である。光源から照射された光がスリットを通過し、フォトダイオードおよびスリットの間を動く二酸化ウラン粒子の陰影をフォトダイオードにより測定する。フォトダイオードにより測定された二酸化ウラン粒子の陰影により粒子の直径が求められる。以上の測定を多数の粒子に対して行うことにより、平均粒径を得た。

[0168] (比較例1)

比較例は、前記実施例において送液手段31としての無脈動ポンプ(富士テクノ工業(株)製)を使用したことに代えて、チューブポンプ(古江サイエンス(株)製)を使用したこと以外は、実施例と同様である。なお、チューブポンプ(古江サイエンス(株)製)を使用した際の平均流量は、0.2L/minであった。

[0169] また、篩い目開き625 μm および575 μm で、二酸化ウラン粒子の分級を行った。この分級の結果、粒径575～625 μm の範囲内に入った二酸化ウラン粒子は、二酸化ウラン粒子全体の10%以下であった。

[0170] また、この比較例で得られた二酸化ウラン粒子の平均粒径は600 μm であった。なお、粒径の測定方法は、前述したPSA法である。

[0171] [第4の形態]

図10は、滴下原液回収装置及びこれを備えたADU粒子製造装置の一例を示す。第4の形態において、ADU粒子製造装置は、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽、前記滴下原液をアンモニア水溶液に滴下させる滴下ノズル装置、前記滴下原液を滴下原液貯留槽から滴下ノズル装置へ移送する滴下原液移送路、アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽、及び滴下原液回収装置を備えて成るバッチ方式のADU粒子の製造装置である。なお、この滴下原液回収装置は、第4の形態以外の態様におけるADU粒子製造装置に組み込むことができる。また、前記滴下ノズル装置としては、前記第1の形態から第3の形態までにおいて示された滴下ノズル装置を適用することができる。

[0172] 滴下原液回収装置は、前記滴下ノズル装置と前記アンモニア水溶液貯留槽との間に、前回のバッチ製造において前記滴下原液移送路中に残存した前記滴下原液を受容する残存滴下原液受器を設置し、かつ前記残存滴下原液受器と前記滴下

原液貯留槽とを接続して前記滴下原液移送路中に残存した前記滴下原液を前記滴下原液貯留槽へ移送する残存滴下原液移送路を有して形成される。

[0173] この発明の一例であるADU粒子製造装置を、図10に基づいて説明する。

[0174] 図10は、この発明のADU粒子製造装置の一例を示す図である。ADU粒子の製造装置1は、硝酸ウラニルを含有する滴下原液42を貯蔵する滴下原液貯留槽25、前記滴下原液42をアンモニア水溶液10に滴下させるノズル4を有する滴下ノズル装置2へ移送する滴下原液移送路43、前記滴下原液42をアンモニア水溶液10に滴下させるノズル4を有する滴下ノズル装置2およびアンモニア水溶液10を貯蔵するアンモニア水溶液貯留槽3が配置されたバッチ方式のADU粒子の製造装置であって、ノズル4を有する滴下ノズル装置2と前記アンモニア水溶液貯留槽3との間に、前回のバッチ製造において、前記滴下原液移送路43中に残存する前記滴下原液に由来する液滴48を受容する残存滴下原液受器44を設置し、かつ前記残存滴下原液受器44と前記滴下原液貯留槽25とを接続して前記滴下原液移送路43中に残存する前記滴下原液を前記滴下原液貯留槽25へ逆移送する残存滴下原液移送路45を設置して成る製造装置である。46は原液送液ポンプを、47は残存滴下原液送液ポンプを表す。点線で示す矢印は、残存滴下原液の移送方向である。前記滴下原液貯留槽25は、温度調節機能(図示していない。)を備えている。

[0175] 前記残存滴下原液受器44は、残存する液滴48を受容することができる形態である限り、その形態に制限はない。例えば、図11に示すように、樋状の受器とすることができる。また、図10に示すように、残存滴下原液受器44は、残存滴下原液が円滑に戻り移送できるように、若干傾斜させて設置されることが好ましく、この樋状の残存滴下原液受器44により集約された残存滴下原液をポンプ47により送液し、滴下原液貯留槽25へ戻り移送することができる。

[0176] この発明のADU粒子製造装置1を用いて以下のようにしてADU粒子が製造される。

[0177] 硝酸ウラニルを含有する滴下原液42は、原液送液ポンプ46を介して滴下原液移送路43により、滴下原液貯留槽25から滴下ノズル装置2へ移送される。続いて、滴下ノズル装置2へ移送された滴下原液42は、ノズル4から滴下され、液滴48となって

アンモニア水溶液10に滴下される。このようにして、アンモニア水溶液貯留槽3中で硝酸ウラニルとアンモニアとが反応し、ADU粒子が形成される。アンモニア水溶液貯留槽3内に所定量のADU粒子が蓄積すると、ノズル4から液滴48の滴下が停止される。換言すると、このADU粒子製造装置においては、バッチ方式で運転される。

[0178] 前記のとおり、ADU粒子が製造され、引き続いて、新たなバッチによりADU粒子の製造を開始する。このとき、前回のバッチ製造において滴下原液移送路43中に残存している残存滴下原液を、新たに調製された滴下原液42を滴下原液移送路43によって移送することによって、押し出す。

[0179] 新たな滴下原液42により押し出された残存滴下原液は、図10に示すADU粒子製造装置1におけるノズル4を有する滴下ノズル装置2へ移送され、ノズル4から液滴48となって落下し、残存滴下原液受器44に貯留される。残存滴下原液受器44に貯留された残存滴下原液は、残存滴下原液送液ポンプ47を介して残存滴下原液移送路45により滴下原液貯留槽25に移送され、新たな滴下原液と混合される。

[0180] このようにして、混合され、適宜、冷却して調製された滴下原液42を用いて、ADU粒子製造装置1により、新たなバッチ方式のADU粒子の製造が再開される。このADU粒子の製造の再開に当り、用いる従来のADU粒子製造装置1においては、前記残存滴下原液と前記新たな原液とが混合され、温度調整して滴下原液42が調製された後に、この発明のADU粒子の製造装置1から残存滴下原液受器44を取り外し、またはノズル4から滴下される滴下原液8のアンモニア水溶液貯留槽3への落下を妨げないように、前記残存滴下原液受器44を移動させる。

[0181] このようにして、第1回目のバッチ方式によるADU粒子を製造した後、第2回目のバッチ方式によるADU粒子を製造し、引き続き、第3回目および第4回目と、繰り返しADU粒子を製造することができる。

[0182] この発明のADU粒子製造装置においては、前回のバッチ製造工程において滴下原液移送路中に残存した、温度制御されていない硝酸ウラニルを含有する滴下原液を、新たなバッチ製造に用いる前記滴下原液に混合して温度制御した後、アンモニア水溶液に滴下させてADU粒子を製造するので、そのADU粒子の熟成、洗浄、乾燥、焙焼、還元および焼結の各工程を経て製造される二酸化ウラン粒子の真球度、

外径、内部組織などにおいて、問題のない均質なADU粒子を高い歩留まりで製造することができ、高温ガス炉用燃料の製造にきわめて有用である。

[0183] 以下、実施例を挙げて、この発明をさらに具体的に説明するが、この実施例によって、この発明はなんら限定されることはない。

[0184] (実施例3)

U_3O_8 粉末5kgを60質量%硝酸3.3Lに溶解して、硝酸ウラニル溶液を調製した。この硝酸ウラニル溶液7.5Lに、増粘剤として、ポリビニルアルコール水溶液およびテトラヒドロフルフリルアルコールを滴下原液全体に対してそれぞれ、17体積%、45体積%の割合で添加して、滴下原液24Lを調製した。120分経過後のこの滴下原液のウラン濃度は180g/Lであり、温度は12℃、粘度は $56 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ (56cP)であった。

[0185] 前記のとおり調製された滴下原液を、ADU粒子の製造装置1の滴下原液貯留槽25に滴下原液42として貯留した。この滴下原液42を原液送液ポンプ46を介して滴下原液移送路43により、ノズル4を有する滴下ノズル装置2へ移送した。次いで、滴下原液42をノズル4から28質量%のアンモニア水溶液10を貯留したアンモニア水溶液貯留槽3に滴下させて、硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させ、ADU粒子を製造した。このとき、滴下原液移送路43中に残存したる滴下原液42の量は、約750mLであった。

[0186] 前記のとおり、ADU粒子を製造した後、二日間を置いて、再度、前記と同様にして原液を調製した。この原液のウラン濃度は180g/lであり、温度は約13℃、粘度は $55 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ (55cP)であった。また、前記滴下原液移送路43中に残存した滴下原液42の温度は約24℃、粘度は $37 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ (37cP)であった。

[0187] 次いで、ADU粒子製造装置1に、残存滴下原液受器44および残存滴下原液移送路45を取り付けた。この製造装置1により、図10に示す滴下原液移送路43中に残存している滴下原液42を、前記の再度調製した原液を滴下原液42として滴下原液移送路43によって移送することによって残存滴下原液を押し出した。

[0188] 追送された残存滴下原液は、ノズル4を有する滴下ノズル装置2へ移送され、ノズル4から液滴48として落下し、残存滴下原液受器44に貯留した。残存滴下原液受器

44に貯留された残存滴下原液を、残存滴下原液送液ポンプ47を介して残存滴下原液移送路45により滴下原液貯留槽25に移送し、前記の再度調製した滴下原液42と混合した。この原液の循環および混合を10分間続け、その間、滴下原液貯留槽25中の攪拌機(図示していない。)により、十分に攪拌混合した。

- [0189] 攪拌混合して調製した滴下原液42を用い、液滴の落下経路から残存滴下原液受器44を除いて、再び、前記と同様にして、ADU粒子を製造した。このとき、アンモニア水溶液10中で形成されるADU粒子には、問題となる変形は認められなかった。
- [0190] このようにして製造されたADU粒子に、加熱により粒子の中心まで完全に硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させて重ウラン酸アンモニウムを生成させる熟成処理、温水によりADU粒子を洗浄する洗浄処理、乾燥処理および大気中で焙焼する焙焼処理を施して、三酸化ウラン粒子となし、さらに、この三酸化ウラン粒子に還元処理および焼結処理を施して、高密度のセラミックス状の二酸化ウラン粒子を得た。
- [0191] このようにして得られた二酸化ウラン粒子を、篩を用いた外径選別および真球度選別機を用いた真球度選別を行い、歩留まりを調べた結果、12gの不良品が含まれていた。
- [0192] (比較例2)
- U_3O_8 粉末5kgを60質量%硝酸3.3Lに溶解して、硝酸ウラニル溶液を調製した。この硝酸ウラニル溶液7.5Lに、増粘剤として、ポリビニルアルコール水溶液(ポリビニルアルコール粉末量75g/L)およびテトラヒドロフルフリルアルコールをそれぞれ、17体積%、45体積%の割合で添加して、滴下原液24Lを調製した。120分経過後のこの原液のウラン濃度は180g/Lであり、温度は13℃、粘度は $55 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ (55cP)であった。
- [0193] 前記のとおり調製された原液を、滴下原液回収装置を装備していない以外は図10に示すのと同様のADU粒子製造装置の滴下原液貯留槽25に滴下原液42として貯留させた。この滴下原液42を原液送液ポンプ4を介して滴下原液移送路43により、ノズル4を有する滴下ノズル装置2へ移送した。次いで、滴下原液42をノズル4から28質量%のアンモニア水溶液10を貯留したアンモニア水溶液貯留槽3に滴下させて、硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させ、ADU粒子を製造した。このとき、滴下原液

移送路43中に残存したる滴下原液42の量は、約750mLであった。

- [0194] 前記のとおり、ADU粒子を製造した後、二日間において、再度、前記と同様にして原液を調製した。この原液のウラン濃度は180g/lであり、温度は約13℃、粘度は $5 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ (55cP)であった。また、前記滴下原液移送路43中に残存した滴下原液42の温度は約22℃、粘度は $39 \times 10^{-3} \text{Pa} \cdot \text{s}$ (39cP)であった。以下、滴下原液移送路43中に滴下原液42が残存した状態で、前記と同様にしてADU粒子を製造した。このとき、滴下原液42をアンモニア水溶液貯留槽3に滴下させてADU粒子を製造する初期段階において、アンモニア水溶液10中で形成されるADU粒子に歪な形状が視認された。
- [0195] このようにして製造されたADU粒子に、前記と同様の熟成処理、洗浄処理、乾燥処理および焙焼処理を施して、三酸化ウラン粒子となし、さらに、この三酸化ウラン粒子に、前記と同様の還元処理および焼結処理を施して、高密度のセラミックス状の二酸化ウラン粒子を得た。
- [0196] このようにして得られた二酸化ウラン粒子を、篩を用いた外径選別および真球度選別機を用いた真球度選別を行い、歩留まりを調べた結果、150gの不良品が含まれていた。この比較的多量の不良品の発生は、前記の歪な形状のADU粒子に起因するものと推測される。
- [0197] [第5の形態]
- この第5の形態は、滴下原液供給装置の一例であり、また、この滴下原液供給装置を備えたADU粒子製造装置の一例である。この発明の滴下原液供給装置は、他の形態であるADU粒子製造装置に組み込むことができる。
- [0198] 図12に、この発明のADU粒子製造装置の一例を示す。なお、この発明の一例であるADU粒子製造装置は、図12に示される装置に限られることはない。図12に示されるように、ADU粒子製造装置1は、複数のノズル4を備えた滴下ノズル装置2と、加振器5と、光照射手段の一例であるストロボ光照射手段51と、流量調節手段11と、滴下原液供給管8と、セパレータ12と、ポンプPと、滴下原液貯留槽25と、アンモニア水溶液貯留槽3とを備える。
- [0199] 前記滴下ノズル装置2は、複数のノズル4を、ノズル4それぞれの一端が下方に向

かうように、かつノズル4の軸線を平行にして横一列に配列してなる。複数のノズル4は、いずれも同一構造を有してなる。ノズル4が管体であるときには、複数のノズル4はいずれも同じ開口径、同じ軸線長さ、同じ材質にて形成されてなる。つまり、複数のノズル4は滴下原液の滴下につき同じ条件となるように設計されている。

[0200] 前記ノズル4は、前記滴下原液供給管8を通して送液された滴下原液をアンモニア水溶液貯留槽3内に蓄えられたアンモニア水溶液に滴下するノズルである。このノズル4は他の形態において記述されたノズルと同様である。

[0201] 前記ノズル4の材料については、この発明における他の形態において説明した通りである。

[0202] 前記ノズル4の本数としては、2〜32本であるのが好ましく、特に、4〜16本であるのが好ましい。

[0203] また、複数のノズル4は、前記したように横一列に配置されるのが好ましく、場合によっては、ノズル4の先端を水平面に投影したときの投影先端部が円形、楕円形、又は方形となるような列をもって複数のノズル4が配置されていても良い。

[0204] この滴下ノズル装置2は、前記アンモニア水溶液貯留槽3の水平断面における中心部に液滴が落下するように、前記アンモニア水溶液貯留槽3の上方に配置される。複数のノズル4それぞれは、その他端に滴下原液供給管8が結合されている。前記滴下ノズル装置2には、加振器5が装着される。この加振器5の構造、機能、振動周波数等については前記第1の形態におけるのと同様である。この滴下ノズル装置2として、他の形態において説明した好適な滴下ノズル装置を適用することができる。

[0205] 前記ストロボ光照射手段51は、前記ノズル4から滴下された液滴に周期的に点滅する光を照射する。

[0206] 前記ストロボ光照射手段51としては、例えば、ストロボ放電管等を挙げることができる。

[0207] 前記ストロボ光照射手段51は、前記ノズル4から滴下される液滴を照射することのできる位置に配置されるのが好ましい。

[0208] 前記流量調節手段11は、ノズル4に供給する滴下原液の流量を調整することができる限り公知の流量調節器を採用することができる。この例においては、滴下原液供

給管8の途中に介装される。もっともこの流量調節手段11が配置される位置としては、特に制限は無い。

- [0209] 前記流量調節手段11で調節される滴下原液の流量は、目標とする液滴の粒径によって適宜に決定される。
- [0210] 前記流量調節手段11を備える滴下原液供給管8の一端がノズル4に結合され、他端は、図12に示すように、セパレータ12および一つのポンプPを介して滴下原液貯留槽25に接続される。また、セパレータ12を用いることなく、各々の滴下原液供給管8を、各々の滴下原液供給管8に備えられたポンプを介して滴下原液貯留槽25に接続してもよい。
- [0211] 前記滴下原液供給管8は、耐薬品性、耐腐食性を有し、かつ、ノズル4近傍において、可撓性を有する管であるのが好ましい。
- [0212] 前記滴下原液供給管8の材料としては、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金等の無機材料またはポリエチレン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリテトラフルオロエチレン樹脂、天然ゴム、ブチルゴム等の高分子材料を挙げることができ、単独で用いてもよく、二種上を組み合わせて用いてもよい。
- [0213] 前記ポンプPは、前記滴下原液貯留槽25内に蓄えられた滴下原液を、流量調節手段11および滴下原液供給管8を介してノズル4に供給するポンプであり、無脈動ポンプが好ましい。
- [0214] 前記滴下原液貯留槽25は、前記第1の形態〜第4の形態における滴下原液貯留槽と同様である。
- [0215] この発明に係るADU粒子製造装置1を用いて、以下のようにして、ADU粒子を製造することができる。
- [0216] 滴下原液貯留槽25に、所定の組成に調製された滴下原液を供給する。
- [0217] ポンプPにより、セパレータ12を介して、それぞれの滴下原液供給管8に滴下原液が供給される。
- [0218] そして、滴下原液は、流量調節手段11を通り、加振器5により振動するノズル4からアンモニア水溶液貯留槽3に蓄えられたアンモニア水溶液に滴下される。
- [0219] 滴下された液滴には、ノズル4とアンモニア水溶液貯留槽3との間に配置されたスト

ロボ光照射手段51により、周期的な光が照射される。

- [0220] ストロボ光照射手段51によりストロボ光がノズル4の振動数と同じ周期で落下する液滴に照射されると、図13に示されるように、ノズル4から落下する複数の液滴列が静止したように目視で観察される。例えば、図13に示されるように、縦の軸線を互いに平行にして横一列に配列された複数のノズル4から落下する液滴が瞬間的にストロボ光により、各ノズル4の先端から一列になって落下する状態が、固定されたように目視で観察される。
- [0221] もし、全てのノズル4から落下する液滴の粒径及び体積が同一であり、全てのノズル4から同時に液滴が落下する場合には、全てのノズル4から落下する液滴は横一列に観察される。もしも、同じタイミングでノズル4から落下するいずれかの液滴が横一列に配列されていない状態に目視で観察されるならば、横一列になっていない液滴は他の液滴よりも体積が大きいのか、又は小さいと判断することができる。
- [0222] そこで、横一列になっていない液滴を落下させているノズル4に結合される滴下原液供給管8における流量調節手段11を操作することによりノズル4に供給される滴下原液の流量を微調整し、全てのノズル4から落下する液滴が横一列に観察されるようになるとその流量の微調整を終了する。
- [0223] このように、複数のノズル4から滴下される液滴にストロボ光を照射するだけで、目視により全てのノズル4から滴下される液滴が同じ体積の液滴であるかどうかを判断することができ、また全てのノズル4から滴下される液滴が同じ体積の液滴となるように簡単に調整することができる。
- [0224] 図12に示されるADU粒子製造装置によると、各ノズル4から滴下される液滴を上記操作により全て同一体積にするように簡単に調整することができる。
- [0225] 全てのノズル4から滴下される全て同じ体積に調整された液滴が、反応槽内に貯留されるアンモニウム水溶液に滴下されるので、この反応槽で、均一な体積のADU粒子が形成される。
- [0226] 次にこの発明の滴下原液供給装置の例を示す。
- [0227] 図14に示されるADU粒子製造装置が、図12に示されるADU粒子製造装置と相違するところは、光照射手段としてストロボ光照射手段51の代わりに連続照射光を照

射する連続光照射手段51Aと、各ノズル4から滴下される液滴の落下軌跡を挟んで前記連続光照射手段51Aと対向配置された複数の光センサー例えば光電変換素子52と、複数の光電変換素子52から出力される光検知信号に基づいて複数のノズル4から滴下されるいずれかの液滴の遅れを計測し、前記各ノズル4に接続された滴下原液供給管8に介装される各流量調節手段11に駆動制御信号を出力する制御部53とを備えることである。

- [0228] 複数の前記光電変換素子52は、複数の、例えば8本のノズル4の数に等しい数の、例えば8個の光電変換素子52-1、52-2、...52-8からなる。
- [0229] 前記光電変換素子としては、公知の素子を用いることができ、例えば、CdS、PbS、PbSe赤外線センサー、フォトランジスター、フォトダイオード、アモルファスSeまたはアモルファスSi等を挙げることができる。
- [0230] 各光電変換素子52-1〜52-8それぞれは、例えば図15に示されるように、各ノズル4から紙面に対して垂直方向に落下する液滴aを挟んで連続光照射手段51Aである前記光源54とは反対側に、各液滴aの落下軌跡毎に配置される。各光電変換素子52-1〜52-8は、光源54と光電変換素子52-1〜52-8との間に液滴が通過しないときには、光電変換された一定の出力Aの検知信号を出力し、光源54と光電変換素子52-1〜52-8との間を液滴が通過すると液滴に吸収された分だけ強度の小さくなった光が光電変換素子52-1〜52-8に到達し、光電変換素子52-1〜52-8は光電変換され、前記出力Aよりも低下した出力Bの検知信号を出力する。したがって、この光電変換素子52-1〜52-8から出力される検知信号により光源54と各光電変換素子52-1〜52-8との間を液滴が通過したことが検知される。
- [0231] 各光電変換素子52-1〜52-8から出力された検知信号は制御部53に出力される。制御部53は、各光電変換素子52-1〜52-8から出力される信号を区別する。例えば光電変換素子52-1から出力される検知信号は、光源54と光電変換素子52-1との間に液滴が通過しないときには、一定の電圧の連続信号となっているが、光源54と光電変換素子52-1との間に、落下して来た液滴が位置すると、光電変換素子52-1から出力される検知信号の出力が低下する。制御部53では、入力する出力低下検知信号を切り出して図16(a)に示すような正のパルス信号に変換する。

- [0232] ノズル4から液滴が間欠的に落下すると、光源54と光電変換素子52-1との間に定期的に液滴が通過する。したがって、光電変換素子52-1から出力される検出信号を入力する制御部53においては、図16(a)に示すように、光電変換素子52-1から継続的に出力される検知信号を、一定間隔のパルス信号として認識する。制御部53は、各光電変換素子52-2〜52-8から出力される検知信号を、同様に、一連の連続するパルス信号として認識する。
- [0233] 複数の各ノズル4の先端から同時に落下するいずれの液滴も同じ体積であるならば、いずれの液滴も光源54と光電変換素子52-1〜52-8との間を同時に通過する。したがって、制御部53では、図16(a)に示すように、光電変換素子52-1〜52-8についてのパルス信号は同時に検出され、同期している。
- [0234] ここで、例えば、数あるノズルの中で或るノズル4から滴下される液滴の体積が他のノズル4から滴下される液滴の体積と相違する場合には、制御部53においては、図16(b)に示すように、光電変換素子52-2についてのパルス信号が他の光電変換素子52-1、52-3〜52-8についてのパルス信号より遅れて検出される。
- [0235] 制御部53においては、光電変換素子52-2についてのパルス信号が他の光電変換素子52-1、52-3〜52-8についてのパルス信号よりも遅れていることを検出すると、図16(b)に示されるように、光電変換素子52-2と光源54との間を通過する液滴を滴下するノズル4における滴下状態が異常であると判断する。制御部53が光電変換素子52-2についてのノズル4における異常を検出すると、制御部53は、流量調節手段11に駆動制御信号を出力し、この駆動制御信号を入力する流量調節手段11によりノズル4に供給される滴下原液の供給量が調整される。
- [0236] 流量調節手段11による制御は、制御部53において検知される光電変換素子52-2についてのパルス信号が他の光電変換素子52-1、52-3〜52-8についてのパルス信号と同期するまで流量調節手段11に駆動制御信号を出力し続ける制御、及び、光電変換素子52-2についてのパルス信号と他の光電変換素子についてのパルス信号との時間差と流量調節手段11における制御量との関係を示す検量線とを予めメモリに記憶しておき、光電変換素子52-2についてのパルス信号の遅れを前記メモリ内の検量線に当てはめて流量調節手段11の制御量を決定し、流量調節手

段11に所定の制御信号を出力する制御等のいずれであつても良い。

[0237] 上記した制御部53を備えたADU粒子製造装置であると、複数のノズルから滴下される液滴の体積を自動的に調節、制御することができる。したがって、このADU粒子製造装置によると、体積にばらつきのないADU粒子を製造することができる。

[0238] 以上、この発明に係るADU粒子製造装置の一例について、特に手動又は自動により複数のノズルから滴下される液滴の体積をばらつきなく、均一にする装置を説明した。

[0239] [第6の形態]

第6の形態は、この発明の一例である液滴表面固化装置とそれを備えたADU粒子製造装置である。なお、この液滴表面固化装置はこの発明のADU粒子製造装置に組み込むことができる。

[0240] 前記ADU粒子製造装置1は、図17に示されるように、アンモニア水溶液貯留槽3と、アンモニア水溶液貯留槽3の上方に設けられた複数の滴下ノズル装置2と、アンモニア水溶液貯留槽3および滴下ノズル装置2の間に設けられた複数のアンモニアガス噴出手段61および複数のアンモニアガス排出手段62とを備えて成る。

[0241] 図17に示されるように、アンモニア水溶液貯留槽3は、アンモニア水溶液を貯留し、滴下ノズル装置2におけるノズル4から落下してくる液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアとを反応させてADU粒子を形成する反応槽である。このアンモニア水溶液貯留槽3は、上部が開口し、下部が閉塞している円筒形状を有している。なお、アンモニア水溶液貯留槽3の下部には、図示は略すが、生成したADU粒子(以下、「ADU粒子」と略す場合がある。)を排出する排出口が設けられている。このアンモニア水溶液貯留槽3は、図17に示されるように、アンモニア水溶液溢流手段が設けられる。このアンモニア水溶液溢流手段は、アンモニア水溶液貯留槽に収容されたアンモニア水溶液の液面から、その上方に配置されている滴下ノズル装置2におけるノズル4の下端部までの距離が一定となるように、アンモニア水溶液の液面高さを一定に調節することができるように、形成される。この第6の形態においては、このアンモニア水溶液溢流手段は、アンモニア水溶液貯留槽3の外周面に設けられた溢流開孔部60Aとその溢流開口部60Aから溢流したアンモニア水溶液を受ける溢流受け部60とを備える

。この溢流受け部60は、第6の形態においては、前記アンモニア水溶液貯留槽3の外周を取り囲むように形成された樋である。このようなアンモニア水溶液溢流手段がアンモニア水溶液貯留槽3に形成されていると、多くの液滴がアンモニア水溶液貯留槽3内に滴下されることにより、アンモニア水溶液の液面が液滴の体積分だけ上昇しようと、上昇しようとする液面のアンモニア水溶液が溢流開口部60Aから溢流受け部60に流出するから、アンモニア水溶液貯留槽3内のアンモニア水溶液の液面が一定に保持されることになる。アンモニア水溶液中に多数の液滴が供給されることになっても、アンモニア水溶液の液面は一定の高さにあるので、ノズルの先端部とアンモニア水溶液の液面との距離が一定になる。そうすると、ノズルから滴下されるいずれの液滴においても、アンモニアガス噴出手段64により供給されるアンモニアガスにより形成されるアンモニアガス雰囲気中を同じように通過するから、この通過中に液滴の表面で形成される硝酸ウラニルとアンモニアとの反応が均一に進行し、これによって均一な品質の、ほぼ真球の重ウラン酸アンモニウム粒子が形成される。

[0242] また、アンモニア水溶液貯留槽3の外部には、アンモニア水溶液貯留槽3内にアンモニアガスを充填させるアンモニアガス供給手段63が設けられている。このアンモニアガス供給手段63は、アンモニア水溶液貯留槽3の側面壁に形成されたアンモニアガス供給口64に接続され、アンモニア水溶液貯留槽3内であってアンモニア水溶液の液面上にアンモニアガスを充填させる。アンモニアガス供給口64は、貯留するアンモニア水溶液の液面より高い位置に形成されている。

[0243] 滴下ノズル装置2は、前記第1の形態～第5の形態における滴下ノズル装置と同様であってよい。

[0244] アンモニアガス噴出手段61は、アンモニア水溶液貯留槽3の開口部の上方で、かつこの開口部を閉塞しない位置に設けられている。このアンモニアガス噴出手段61は、詳しくは、図18に示されるように、前記複数のノズル4から各々滴下される滴下原液の液滴に、前記液滴が落下する落下行路Xに向けて各々アンモニアガスを噴出可能であればよく、液滴の各々の滴下行路X上に各々アンモニアガスを噴出可能な複数の円形状のアンモニアガス噴出口65を有している。つまり、複数のノズル4それぞれにより形成される滴下粒子の落下行路X毎にアンモニアガス噴出口65が配設され

る。なお、アンモニアガスは、アンモニアガス供給手段63より、アンモニアガス噴出手段61へ供給されている。

[0245] このアンモニアガス噴出口65から噴出されるアンモニアガスの噴出方向と滴下行路Xとは、直交することが好ましい。このようにすれば、各液滴の表面に均等にアンモニアガスを吹きかけることができる。

[0246] 図18に示されるような具体的な態様においては、一例として、前記複数のアンモニアガス噴出口65の内径D1は、1〜17mmである。ここで、内径D1が、1mm未満であると、液滴の一部分にしかアンモニアガスを吹き付けることができない場合がある。内径D1が、17mmを超えると、各々隣接する液滴に同時にアンモニアガスを吹き付けてしまい、結果として、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けが不均一となる場合がある。

[0247] また、図18に示されるような具体的な態様においては、一例として、ノズル4の先端から前記アンモニアガス噴出口65の上端までの高さH1は、10〜40mmである。ここで、高さH1が、10mm未満であると、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けの時間が長すぎて、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けが過剰になる場合がある。高さH1が、40mmを超えると、液滴に対するアンモニアガスの吹き付けの時間が短くなり、アンモニアガスの吹き付けが不十分となる場合がある。

[0248] さらに、図18に示されるような具体的な態様においては、一例として、前記滴下行路Xと前記アンモニアガス噴出口65先端との距離L1が、3〜15mmである。ここで、距離L1が、3mm未満であると、アンモニアガス噴出口65自体に液滴の付着が発生してしまう場合がある。距離L1が、15mmを超えると、噴出されるアンモニアガスが周囲の空気を含んでしまい、液滴に吹きかけるに十分なアンモニアガス濃度を確保できない場合がある。

[0249] また、この複数のアンモニアガス噴出手段61は、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能である。詳しくは、図19に示されるように、アンモニアガス噴出口65(図18参照)の各々にアンモニアガスを供給する配管66に流量計67を接続し、この配管66に接続されるバルブ68を操作し、流量計67を観察することでアンモニアガスの噴出流量を各々調節する。

- [0250] なお、図18において前記内径D1、高さH1及び距離L1が前記範囲である場合に、アンモニアガス噴出口65からアンモニアガスを噴出する際の流量計67での流量が、3〜25L/minであることが好ましい。アンモニアガスを噴出する際の流量が、3L/min未満であると、重ウラン酸アンモニウムを含有する被膜の形成が貧弱な液滴が形成される可能性があり、アンモニアガスを噴出する際の流量が、25L/minを超えると、アンモニアガスの気流により液滴の自由落下が阻害されるとともに、粒子の表面に波紋状の模様を生じる可能性がある。
- [0251] アンモニアガス排出手段62は、アンモニア水溶液貯留槽3の開口部の上方で、かつこの開口部を閉塞しない位置に設けられる。アンモニアガス排出手段62は、さらに詳しくは、図18に示されるように、アンモニアガス噴出手段61とは前記滴下行路Xに対して反対側の位置に設けられ、噴出されたアンモニアガスを排出する。
- [0252] なお、前記滴下行路Xと前記アンモニアガス排出手段62の先端との距離L2は、液滴とアンモニアガス排出手段62が干渉しない程度の距離で、かつ、アンモニア噴出口65より噴出されたアンモニアを適切に排出できる程度の距離であればよい。
- [0253] このようにアンモニアガス排出手段62が配置されていると、アンモニアガス噴出手段61から噴出するアンモニアガス流を滞留させることがなく、アンモニアガス噴出手段61からアンモニアガス排出手段62迄を円滑に流れるアンモニアガス気流を形成することができる。
- [0254] このアンモニアガス排出手段62は、落下する液滴の落下行程Xを横切るアンモニアガスの気流に乱流を生じさせず、アンモニアガスの円滑な気流を形成することができるように形成されていけばよい。好適なアンモニアガス排出手段62は、その内部に気体吸引手段例えば吸引ファン(図示せず。)を内蔵する。アンモニア排出手段62が気体吸引手段を備えて成ると、アンモニアガス噴出口65から噴出されたアンモニアガスが上昇してノズル4に到達するのが防止される。ノズル4の詰まりが防止されると、重ウラン酸アンモニウム粒子の製造を円滑に行うことができる。
- [0255] 図18に示される態様においては、アンモニアガス排出手段62は、アンモニアガス噴出口65に向かい合って開口するアンモニアガス吸引口(図示せず。)を、アンモニアガス噴出口65毎に配設している。

- [0256] このようなアンモニアガス排出手段62であると、アンモニアガス噴出口65とこれに向かい合うアンモニアガス吸引口との間に、アンモニアガス噴出口65から噴出し、乱されることのないアンモニアガス気流が形良く形成される。そして、このように乱れることなく流れるアンモニアガス気流中を液滴が落下すると、アンモニアガス気流中を通過する液滴全体を包み込むようにアンモニアガス気流が流れるので、液滴の表面に均一な重ウラン酸アンモニウムを含有する被膜が形成されることになる。
- [0257] 上記したADU粒子製造装置の使用法および作用を以下に述べる。まず、アンモニア水溶液貯留槽3内に所定濃度、所定量のアンモニア水溶液を貯留する。一方、アンモニアガス供給手段63を作動させ、アンモニア水溶液貯留槽3内に所定濃度及び所定量のアンモニアガスを充填させる。
- [0258] 次に、滴下ノズル装置2に所定の滴下原液を流通させ、複数の滴下ノズル装置2より滴下原液の液滴を滴下する。滴下された各々の液滴は、滴下行路X上を落下する。一方、アンモニアガス噴出手段61のアンモニアガス噴出口65から、前記液滴が自由落下により通過する滴下行路Xそれぞれにアンモニアガスが各別に噴出される。アンモニアガス噴出口65から噴出されたアンモニアガスは、各液滴に各々均等に吹きかけられることとなり、各液滴の表面では、ゲル化が進む。
- [0259] そして、アンモニアガス排出手段62において、噴出されたアンモニアガスを排出する。このアンモニアガス排出手段62が噴出されたアンモニアガスを排出することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなる。また、アンモニアガスを上方のノズル側に移動させることを防止することによりノズルでのゲル化による閉塞を防止できる。
- [0260] さらに、アンモニアガスを吹きかけられた各液滴は、アンモニア水溶液貯留槽3の開口部からアンモニア水溶液貯留槽3の内部へ落下する。ここで、アンモニア水溶液貯留槽3の内部のアンモニア水溶液液面よりも上側の部分は、アンモニアガスが充満した状態である。このアンモニア水溶液貯留槽3の内部の落下の際に、各液滴が、アンモニアガスが充満した部分からアンモニアガスを吸収することとなる。このアンモニアガスの吸収により、各液滴の表面は、一層ゲル化が進む。
- [0261] その後、各液滴は、アンモニア水溶液貯留槽3の内のアンモニア水溶液内に落下、

沈降していき、このアンモニア水溶液より、さらにアンモニアを吸収する。そして、各液滴は、表面だけでなく、内部までもゲル化が進み、ADU粒子へと反応が進む。

[0262] アンモニア水溶液内に多数の液滴が沈降すると、それら多数の液滴の体積分だけアンモニア水溶液の液面が押し上げられようとする。液面が押し上げられるアンモニア水溶液は溢流開口部60Aから流出し、流出したアンモニア水溶液が溢流受け60に受けられる。なお溢流受け部60には、受けたアンモニア水溶液を排出するドレイン口(図示せず。)が設けられている。

[0263] 所定の時間後、反応が進み、アンモニア水溶液貯留槽3の下部に沈殿したADU粒子は、図示しないアンモニア水溶液貯留槽3の排出口より、アンモニア水溶液貯留槽3の外部へ排出される。

[0264] なお、アンモニア水溶液貯留槽3外部へ排出されたADU粒子は、乾燥して、その後、所定の条件で焙焼、還元・焼結の各工程を経て、二酸化ウラン粒子となる。

[0265] 上述のような本実施形態によれば、次のような効果がある。

(1)複数の滴下ノズル装置2から各々滴下される滴下原液の液滴に、アンモニアガス噴出手段61から液滴の各々の滴下行路X上に各々アンモニアガスを噴出するから、各液滴ごとに均一にアンモニアガスを噴出することになり、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することもなくなり、表面が均一にゲル化されることにより真球性の良い二酸化ウラン粒子を得ることができる。

(2)アンモニアガス排出手段62が噴出されたアンモニアガスを排出することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなるので、より一層生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することがなくなるとともに表面が均一にゲル化されることにより、アンモニア水に着水時の変形が生じにくくなる。

(3)アンモニアガス噴出手段61においては、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能であることにより、アンモニアガスの圧力損失が異なる場合でも、アンモニアガスの噴出状態を一定に保つことができる。

[0266] なお、この発明は前記実施形態に限定されるものではなく、この発明の目的を達成できる範囲での変形、改良は、この発明に含まれるものである。

- [0267] 前記実施形態においては、例えば、アンモニアガス噴出手段61は、複数の円形状のアンモニアガス噴出口65を有しているものであったが、これに限られず、図20に示されるように、液滴の各々の滴下行路X方向に長いスリット状のアンモニアガス噴出口65Aとしても良い。
- [0268] その他、この発明を実施する際の具体的な構造および形状等は、この発明の目的を達成できる範囲内で他の構造等としてもよい。
- [0269] [第7の形態]
- この第7の形態は、この発明の一例であるアンモニア水溶液循環装置とそれを組み込んで成る、一例としてのADU粒子製造装置である。この発明のアンモニア水溶液循環装置はこの発明のADU粒子製造装置に組み込むことができる。
- [0270] 図21に示されるように、本発明の一実施形態に係るADU粒子製造装置1は、アンモニア水溶液貯留槽3と、滴下ノズル装置2と、アンモニア水溶液循環装置71とを備えて成る。
- [0271] アンモニア水溶液貯留槽3は、アンモニア水溶液を貯留する槽であり、このアンモニア水溶液貯留槽3において、アンモニア水溶液に含まれるアンモニアと、後述する滴下ノズル装置2から滴下されたところの、硝酸ウラニル含有の滴下原液に含まれる硝酸ウラニルとが化学反応して、ADU粒子が形成される。
- [0272] 前記アンモニア水溶液貯留槽3の材質については第1の形態において説明した通りである。
- [0273] 前記アンモニア水溶液貯留槽3の形状としては、アンモニア水溶液を貯留することができる限りその形状に特に制限がないが、図21に示されるように、例えば、その上部が円筒状であり、その底部73が漏斗状であることが好ましい。
- [0274] これによれば、ADU粒子を取り出す際、底部73にADU粒子が残留することがないので、メンテナンスが簡単になる。
- [0275] 前記アンモニア水溶液貯留槽3の側面部72および底部73には、それぞれ側面開口部74および底部開口部75が形成されている。
- [0276] また、側面開口部74には、前記アンモニア水溶液貯留槽3内のADU粒子、これらの破片及び断片等の固形分がアンモニア水溶液循環用配管80に流入するのを阻

止する固形分流入阻止手段76が設けられていることが好ましく、底部開口部75にも、この固形分流入阻止手段76が設けられていることがより好ましい。

- [0277] 固形分流入阻止手段76としては、著しい圧力損失がなく、アンモニア雰囲気で使用できるものであればよく、セラミックス製のフィルター等の多孔質部材、ステンレス等で形成された金属メッシュ等の網部材、並びにガラスウール等の集塊物、織布、不織布及び編物が挙げられる。
- [0278] さらに、アンモニア水溶液貯留槽3の底面部77には、取出配管78と、前記取出配管78を開閉可能にする開閉手段79とが設けられていることが好ましい。これによれば、アンモニア水溶液貯留槽3の底部73に溜まったADU粒子が、重力によって、アンモニア水溶液貯留槽3の底面部77および取出配管78及び開閉手段79を経て、特別な設備を使用せずにアンモニア水溶液貯留槽3の外部に取り出すことができる。
- [0279] 取出配管78としては、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材料で形成されていれば、特に制限は無く、前記材料としては、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウム又はジルコニウム合金等を挙げることができる。
- [0280] 開閉手段79としては、取出配管78を開閉可能にする手段であれば良く、例えば、ボールバルブ、バタフライバルブ等が挙げられる。
- [0281] 滴下ノズル装置2は、前記アンモニア水溶液貯留槽3に貯留されるアンモニア水溶液に原液を粒子状に滴下させるノズル4を有する。ノズル4については例えば前記第1の形態におけるのと同様である。
- [0282] アンモニア水溶液循環装置71は、前記アンモニア水溶液貯留槽3に滴下された硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成されたADU粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記アンモニア水溶液貯留槽3の底部73に供給し、側面開口部74から排出することによってアンモニア水溶液を循環させるように形成される。
- [0283] アンモニア水溶液循環装置71は、前記アンモニア水溶液貯留槽3の側面と底面とに夫々開口する側面開口部74と底部開口部75とを連結するアンモニア水溶液循環路例えばアンモニア水溶液循環用配管80と、前記アンモニア水溶液循環用配管80に設けられたポンプPとを備えて成ることが好ましい。

- [0284] アンモニア水溶液循環用配管80は、底部開口部75側において、水平方向に対して下方に傾斜して連結されることが好ましい。
- [0285] これによれば、底部開口部75から供給されるアンモニア水溶液が、上昇流となり、底部73近傍に溜まった滴下された粒子を下側から押上げるようになるため、滴下された粒子を上昇流動可能な状態とすることができる。
- [0286] また、アンモニア水溶液循環用配管80は、底部開口部75側のアンモニア水溶液循環用配管80の中心軸と、対向する底部73の内壁面81とが、図21に示すように平行に連結されることが好ましい。
- [0287] これによれば、底部開口部75から供給されるアンモニア水溶液が、上昇流となり、底部73近傍に溜まった滴下された粒子を下側から押上げるようになる。そして、この上昇流は、対向する底部73の内壁面81に沿って上昇することとなるため、内壁面81に沿った上昇流は、その後、アンモニア水溶液貯留槽3の内壁面と衝突して、アンモニア水溶液貯留槽3の内部で旋回流を形成するようになる。そのため、アンモニア水溶液貯留槽3内部の滴下された粒子を攪拌するようになり、滴下された粒子同士が堆積することがなくなるので、滴下された粒子の変形をより一層防止することができる。
- [0288] 上記したADU粒子製造装置1の動作を以下に説明する。まず、ポンプPを作動させ、側面開口部74、ポンプP、底部開口部75の順にアンモニア水溶液が流れるようにする。
- [0289] そして、滴下ノズル装置2から液滴Aをアンモニア水溶液貯留槽3へ滴下させる。すると、液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアが反応して、ADUが生成される。
- [0290] アンモニア水溶液貯留槽3内では、底部開口部75から供給されたアンモニア水溶液により、上昇流となり、底部73近傍に溜まる滴下された粒子を下側から押上げるようになるため、滴下された粒子が上昇流動可能な状態となる。
- [0291] 以上の操作を所定の時間行い、硝酸ウラニルとアンモニアの形成反応が十分に完了した後、ポンプPを止め、アンモニア水溶液貯留槽3内部の流動状態を止める。
- [0292] その後、開閉手段79により、取出配管78を開状態とし、アンモニア水溶液貯留槽3の外部へ滴下された粒子を取り出す。

[0293] 上述のような本実施形態によれば、次のような効果がある。

(1) 滴下された粒子が上昇流動可能な状態となることで、アンモニア水溶液貯留槽3内部の滴下された粒子を攪拌するようになり、滴下された粒子同士が堆積することがなくなるので、滴下された粒子の変形を防止することができる。また、アンモニア水溶液及び滴下された粒子が流動しているため、滴下された粒子表面で反応して、アンモニアが消費されたアンモニア水溶液が、滴下された粒子近傍から除去されて、新たに滴下された粒子表面とアンモニア水溶液とが接触するので、反応の効率がよい。したがって、ADU粒子の変形がなく、内部欠陥のない高品質のADU粒子を効率的に生産することができる。

[0294] なお、本発明は前記実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲での変形、改良は、本発明に含まれるものである。

[0295] 前記実施形態においては、例えば、アンモニア水溶液循環用配管80は、底部開口部75側において、水平方向に対して下方に傾斜して連結されることにより、アンモニア水溶液の上昇流を形成していたが、これに限られず、図22に示すように、底部開口部75近傍に設けられたガイド板82により、上昇流を形成するようにしてもよい。このガイド板82は、水平方向に対して上方に傾斜して設けられている。ガイド板82は、アンモニア水溶液循環作業時に使用し、作業後は取り外しできる構造としてもよい。

[0296] 前記実施形態においては、例えば、底部73は、漏斗状であったが、底部73も円筒形状であってもよい。

[0297] (実施例3)

前記実施形態における図21のADU粒子製造装置を使用して、ADU粒子を製造した。なお、貯留槽の内容積は、70リットルであった。アンモニア水溶液の濃度は、25体積%であった。まず、ポンプPを作動させ、側面開口部74、ポンプP、底部開口部75の順にアンモニア水溶液が流れるようにした。

[0298] そして、滴下ノズル装置2から液滴Aをアンモニア水溶液貯留槽3へ滴下させた。すると、液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアが反応して、重ウラン酸アンモニウム(ADU)が生成された。なお、滴下した原液の量は、約10リットルであった。

- [0299] アンモニア水溶液貯留槽3内では、底部開口部75から供給されたアンモニア水溶液により、上昇流となり、底部73近傍に溜まる滴下された粒子を下側から押上げるようになるため、滴下された粒子が上昇流動の状態となっていた。
- [0300] 以上の操作を所定の時間行い、硝酸ウラニルとアンモニアの反応が十分に完了した後、ポンプPを止め、アンモニア水溶液貯留槽3内部の流動状態を止めた。
- [0301] その後、開閉手段79により、取出配管78を開状態とし、アンモニア水溶液貯留槽3外部へ粒子を取り出した。
- [0302] ADU粒子に対して、所定の後処理をしたのち、得られた燃料核を外観観察、断面観察を行ったところ、変形や、内部に空隙を有する燃料核は確認されなかった。したがって、高品質の重ウラン酸アンモニウム(ADU)を効率的に生産することができることが分かった。

請求の範囲

- [1] 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を、アンモニア水溶液貯留槽に貯留された前記アンモニア水溶液中に滴下する複数のノズルと、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器とを備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置。
- [2] ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段が設けられて成ることを特徴とする前記請求項1に記載の滴下ノズル装置。
- [3] 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する一基のノズル又は硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する複数基のノズルと、前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を収容可能に、前記一基のノズルの内容積又は複数基のいずれのノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、収容した滴下原液を重力に従って前記一基のノズル又は複数基の全てのノズルに供給する滴下原液収容部とを備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置。
- [4] 前記滴下原液収容部が、前記一基のノズル又は複数基のいずれのノズルの水平断面積よりも大きい水平断面積を有して成る滴下原液収容部である前記請求項3に記載の滴下ノズル装置。
- [5] 前記滴下原液収容部が、前記一基のノズル又は複数基の全てのノズルに直結されてなる前記請求項3又は4に記載の滴下ノズル装置。
- [6] 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する一基のノズル又は硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下する複数基の全てのノズルの先端部には、前記滴下原液の滴下方向に向かうエッジが形成されていることを特徴とする前記請求項3～5のいずれか1項に記載の滴下ノズル装置。
- [7] 前記ノズルに、滴下原液貯留槽に貯留された滴下原液を、実質的に定量かつ無脈動で供給する送液手段を備えてなることを特徴とする前記請求項1～6のいずれか一項に記載の滴下ノズル装置。
- [8] 滴下原液貯留槽に貯留されたところの、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下原液移送路を通じて送られ、その滴下原液をアンモニア水溶液に滴下させるノズルを有する滴下ノズル装置におけるそのノズルと前記アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽との間に、前記ノズルからアンモニア水溶液への滴下原液の滴

下を停止したときに前記滴下原液移送路中に残存した前記滴下原液の残部を受容する残存滴下原液受器と、前記残存滴下原液受器に受容された滴下原液の残部を前記滴下原液貯留槽に移送する残存滴下原液移送路とを有して成ることを特徴とする滴下原液回収装置。

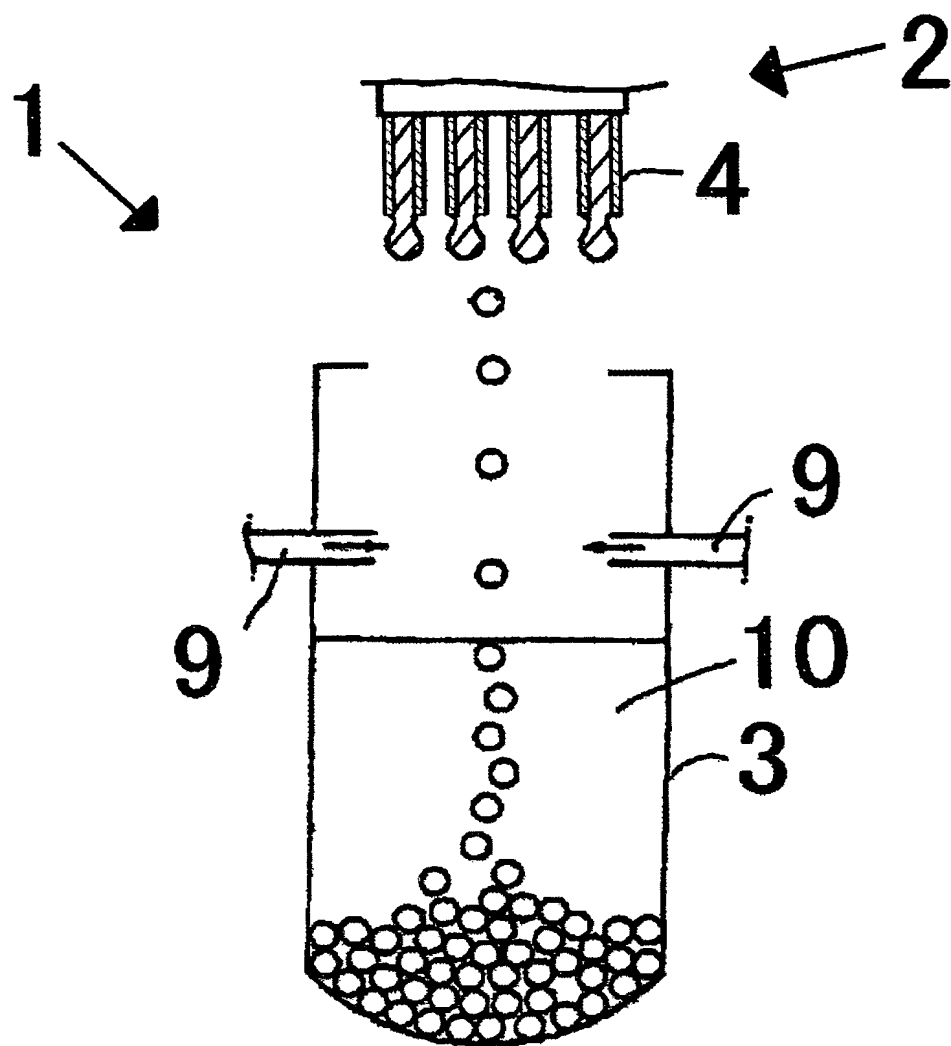
- [9] 前記滴下ノズル装置が前記請求項1〜7のいずれかに記載の滴下ノズル装置である滴下原液回収装置。
- [10] 複数のノズルを備えた滴下ノズル装置におけるそれら複数のノズルそれぞれから落下する硝酸ウラニル含有の滴下原液の液滴に、光を照射する光照射手段と、前記光照射手段により照射された液滴の落下状態に応じて、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から各ノズルへの滴下原液の供給量を調節する流量調節器とを有することを特徴とする滴下原液供給装置。
- [11] 前記滴下ノズル装置が前記請求項1〜7のいずれかに記載の滴下ノズル装置である滴下原液供給装置。
- [12] 前記光照射手段が、周期的に点滅する光を照射するストロボ光照射手段である前記請求項10又は11に記載の滴下原液供給装置。
- [13] 前記光照射手段から発せられる光を検知する光センサーと、前記光センサーから出力される検知信号を入力することにより各ノズルから滴下される液滴の流量が同一となるように前記流量調節器を制御する制御手段とを有する前記請求項10〜12のいずれか一項に記載の滴下原液供給装置。
- [14] アンモニア水溶液貯留槽に貯留されたアンモニア水溶液に、滴下原液貯留槽から供給される滴下原液を滴下する一基又は複数のノズルを備えた滴下ノズル装置における一基又はそれら複数のノズルそれぞれから滴下される滴下原液の液滴が落下する落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能なアンモニアガス噴出手段を備えて成ることを特徴とする液滴表面固化装置。
- [15] 前記滴下ノズル装置が前記請求項1〜7のいずれかに記載の滴下ノズル装置である液滴表面固化装置。
- [16] 前記アンモニアガス噴出手段から噴出されたアンモニアガスを排出するアンモニアガス排出手段を備えて成り、前記アンモニアガス排出手段は、前記液滴の落下行路

を中にして前記アンモニアガス噴出手段とは反対側の位置に設けられることを特徴とする前記請求項14又は15に記載の液滴表面固化装置。

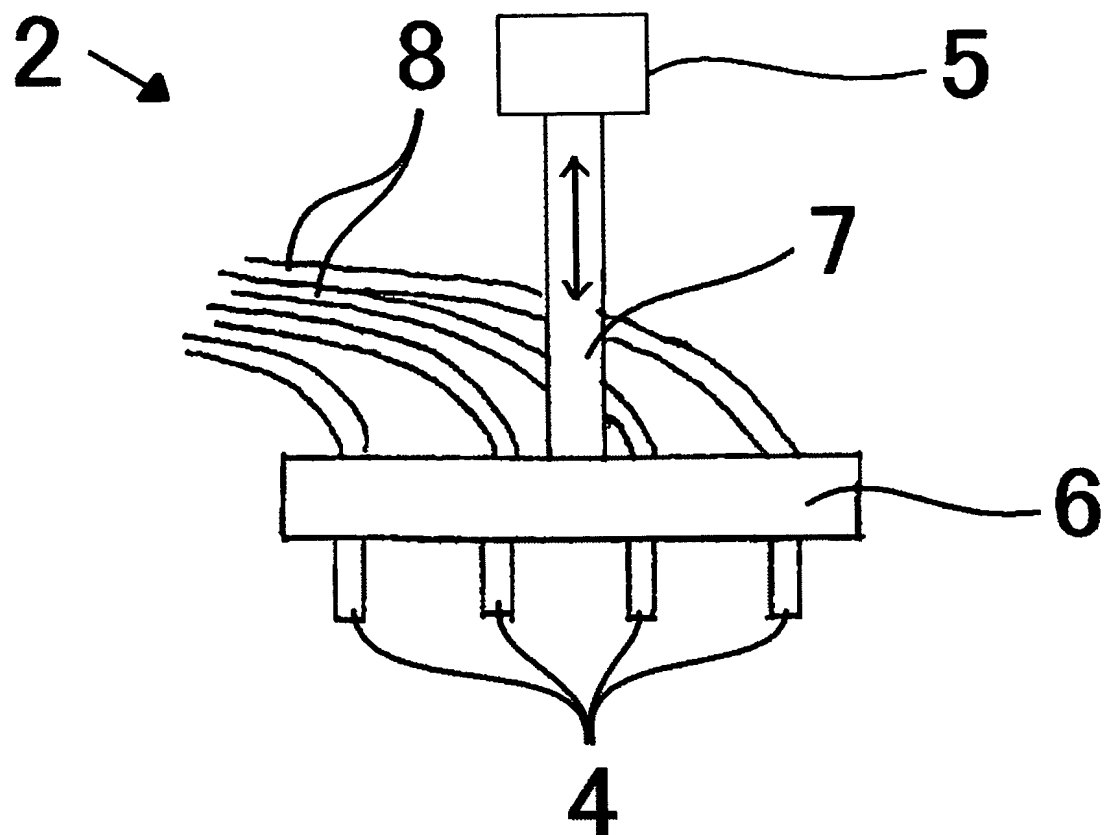
- [17] 前記アンモニアガス噴出手段は、前記液滴の落下行路に向けてアンモニアガスを噴出可能な複数のアンモニアガス噴出口を有し、前記複数のアンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量を調節可能であることを特徴とする前記請求項14～16のいずれか一項に記載の液滴表面固化装置。
- [18] 前記アンモニア水溶液貯留槽は、ノズルの先端部からアンモニア水溶液貯留槽内に貯留されたアンモニア水溶液の液面までの距離が一定となるように、貯留するアンモニア水溶液溢流手段を備えてなる前記請求項14～17のいずれか1項に記載の液滴表面固化装置。
- [19] ノズルの先端から前記アンモニアガス噴出口の上端までの高さが、10～40mmであり、ノズルの先端から落下する液滴の行路である滴下行路から前記アンモニアガス噴出口先端までの最短距離が、3～15mmであり、アンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量が、3～25L/minであることを特徴とする前記請求項14～18までのいずれか1項に記載の液滴表面固化装置。
- [20] 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下ノズル装置におけるノズルから滴下した液滴を受け入れるアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽内のそのアンモニア水溶液中で、前記液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記アンモニア水溶液貯留槽の底部からその内部に供給するアンモニア水溶液循環路を備えてなることを特徴とするアンモニア水溶液循環装置。
- [21] 前記滴下ノズル装置が前記請求項1～7のいずれかに記載の滴下ノズル装置であるアンモニア水溶液循環装置。
- [22] 前記アンモニア水溶液貯留槽の側面部および底部には、それぞれ側面部開口部および底部開口部が形成され、前記アンモニア水溶液供給手段は、前記側面部開口部と前記底部開口部とを連結するアンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えて成ることを特徴とする前記請求項20又は21に記載のアンモニア水溶液循環装置。

- [23] 前記側面部開口部には、前記アンモニア水溶液貯留槽内に存在する固形分が前記アンモニア水溶液循環用配管に流入することを阻止する流入防止手段が設けられていることを特徴とする前記請求項22に記載のアンモニア水溶液循環装置。
- [24] 前記アンモニア水溶液貯留槽の底面部には、取出配管と、前記取出配管を開閉可能にする開閉手段とが設けられていることを特徴とする前記請求項20～23のいずれか1項に記載のアンモニア水溶液循環装置。
- [25] 前記請求項1～7のいずれか一項に記載の滴下ノズル装置、前記請求項8又は9に記載の滴下原液回収装置、前記請求項10～13のいずれか一項に記載の滴下原液供給装置、前記請求項14～19のいずれかに一項に記載の液滴表面固化装置及び前記請求項20～24のいずれか一項に記載のアンモニア水溶液循環装置のいずれかを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

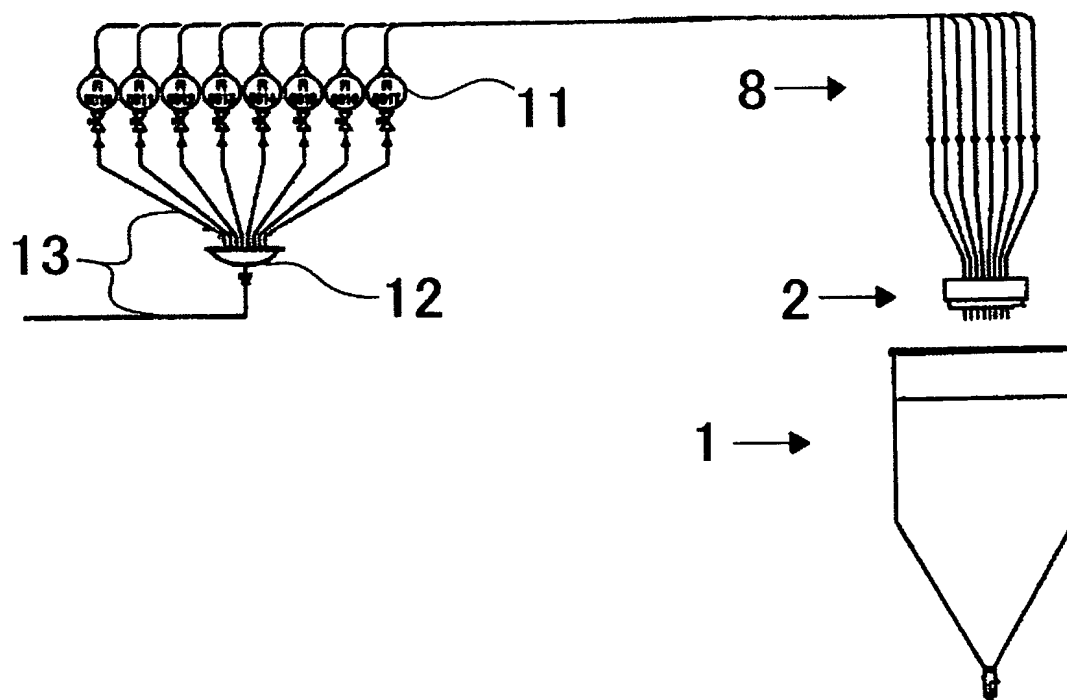
[図1]



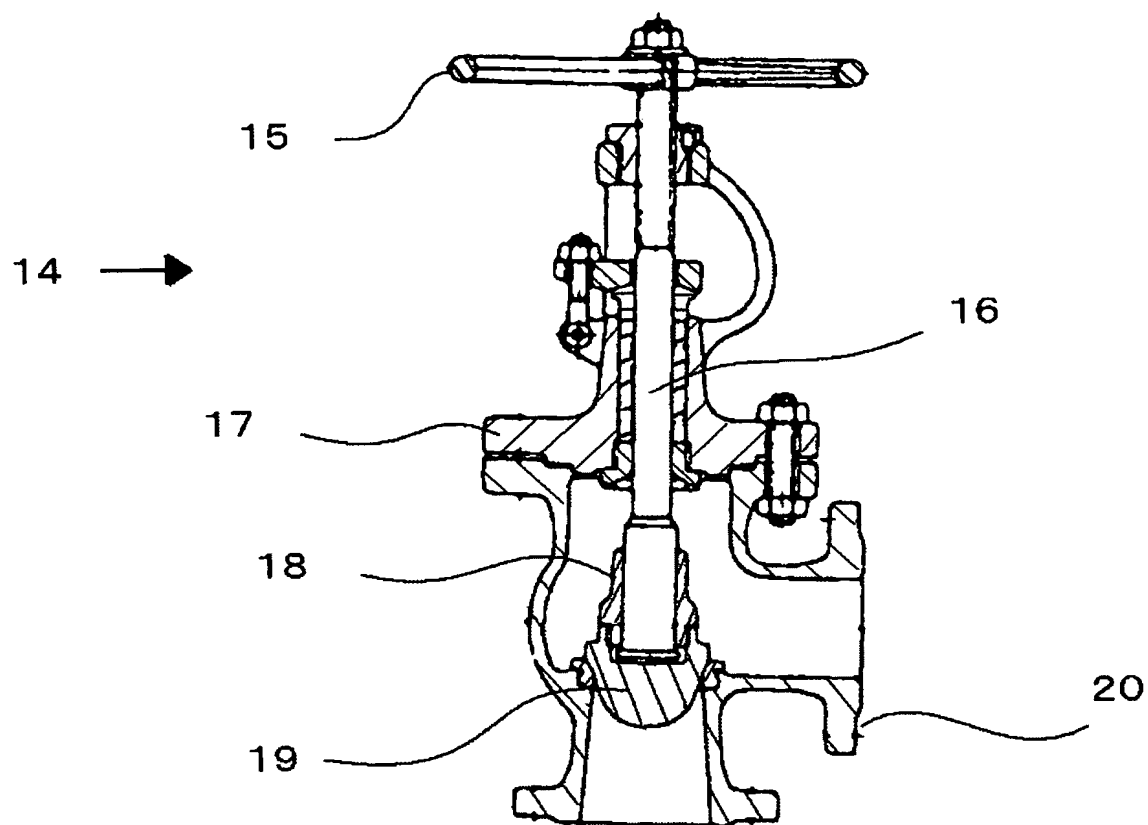
[図2]



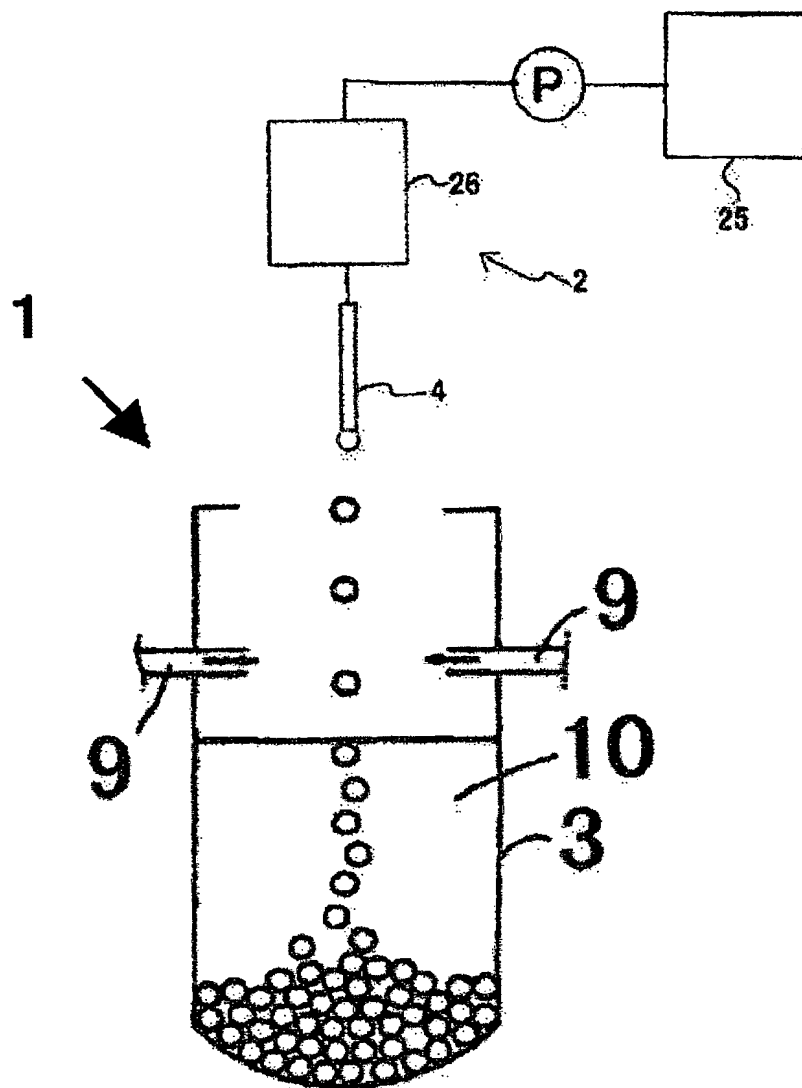
[図3]



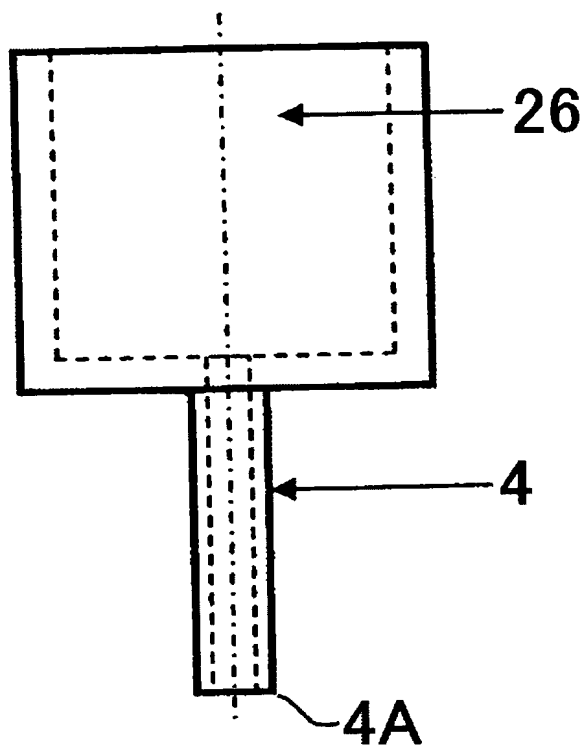
[図4]



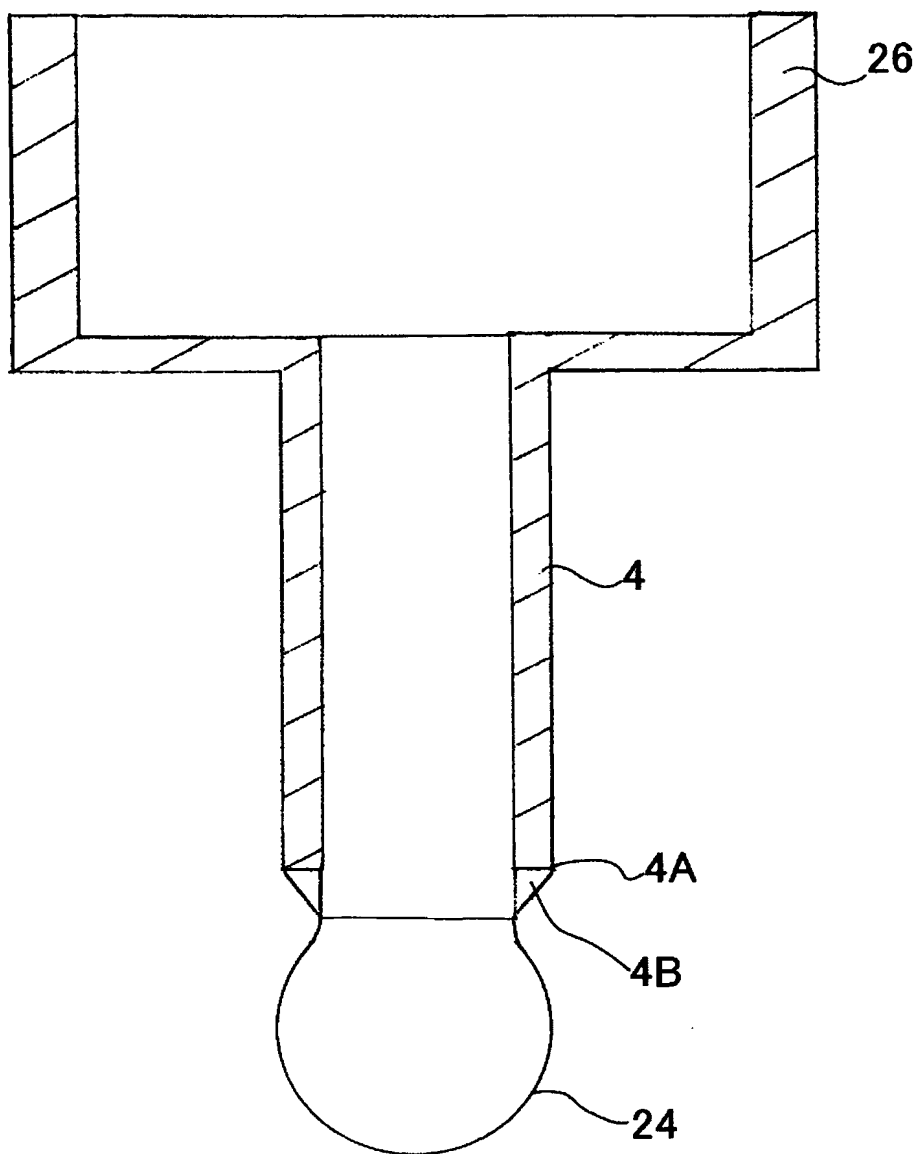
[図5]



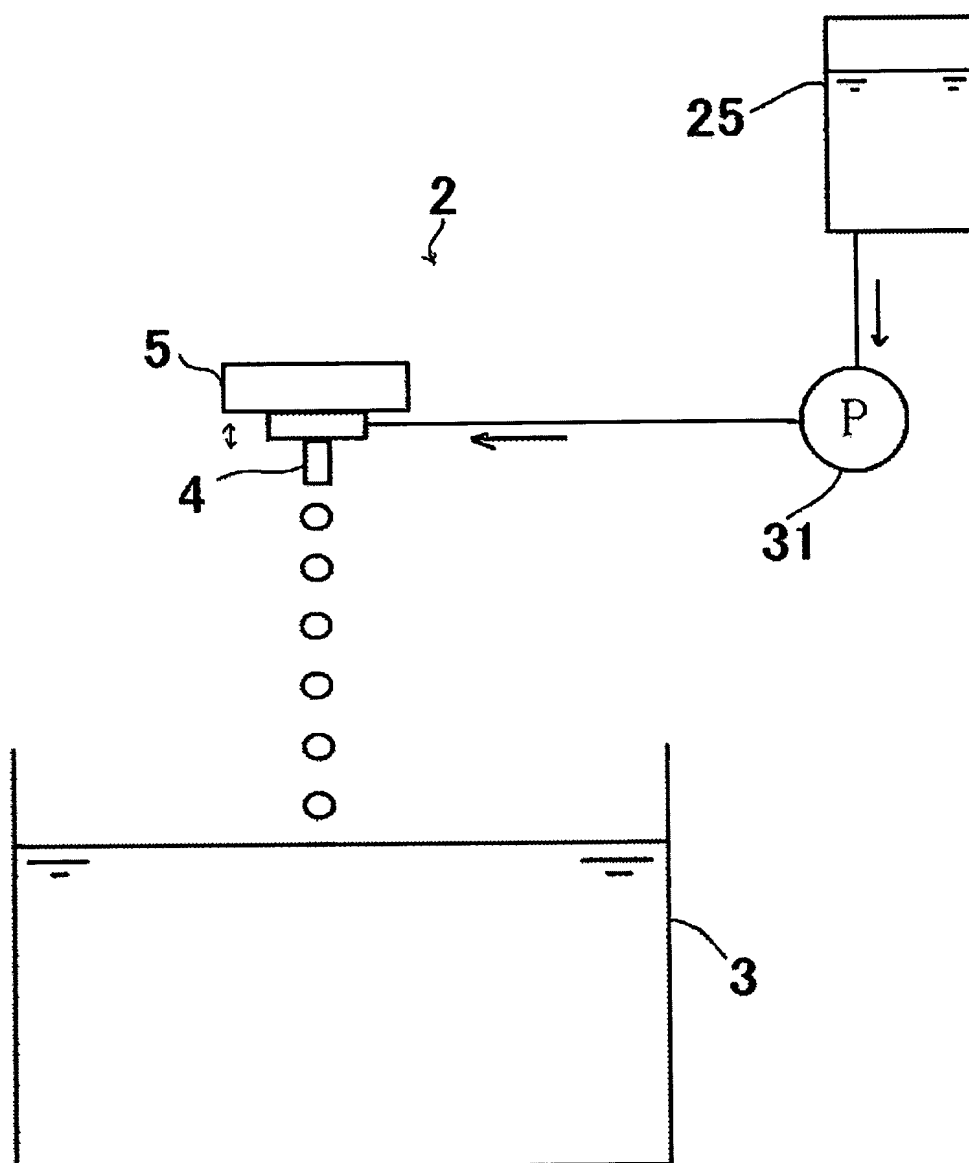
[図6]



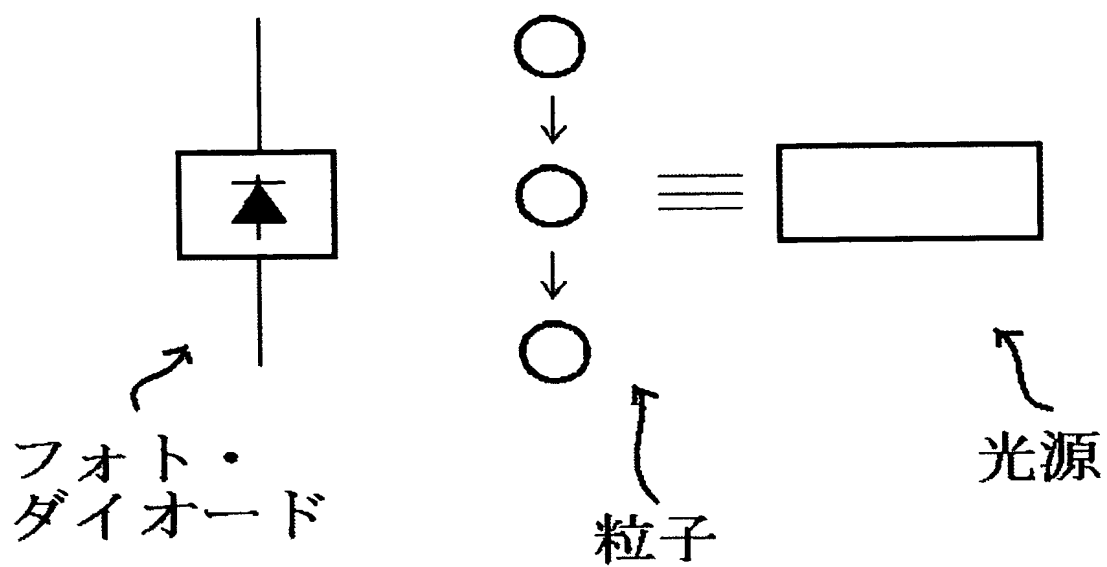
[図7]



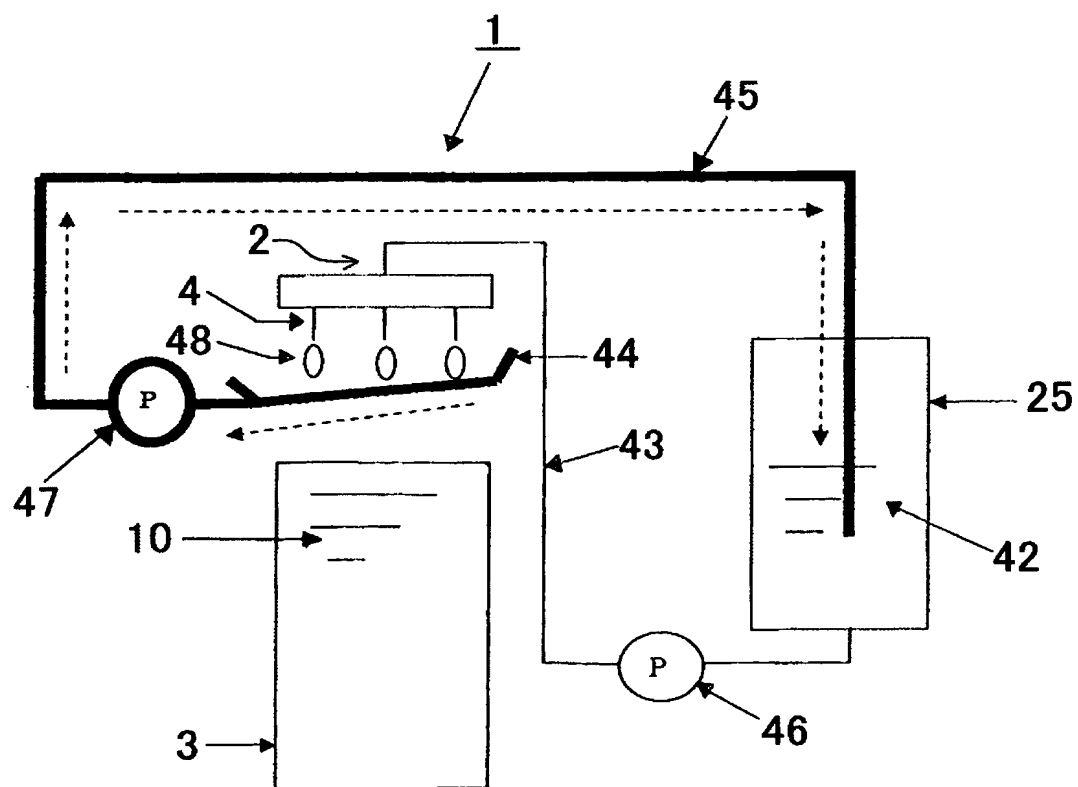
[図8]



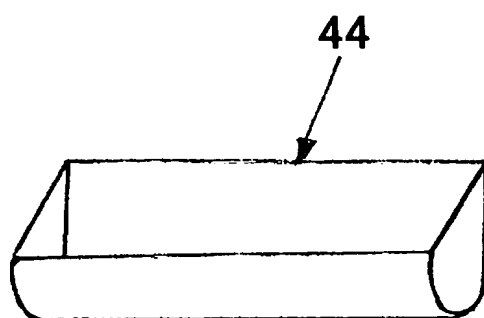
[図9]



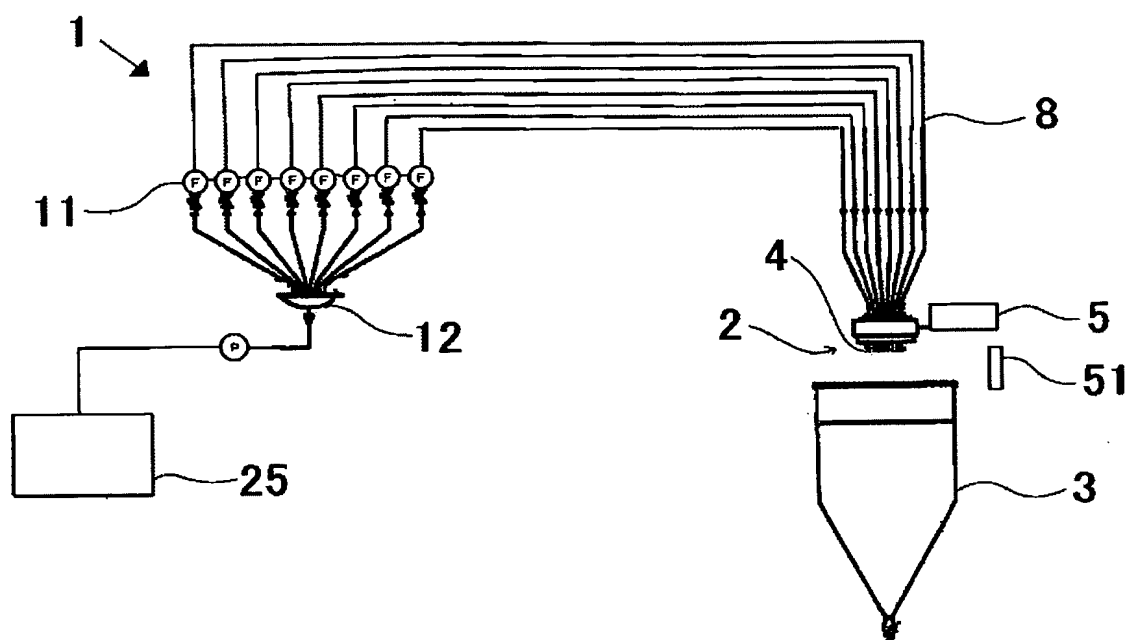
[図10]



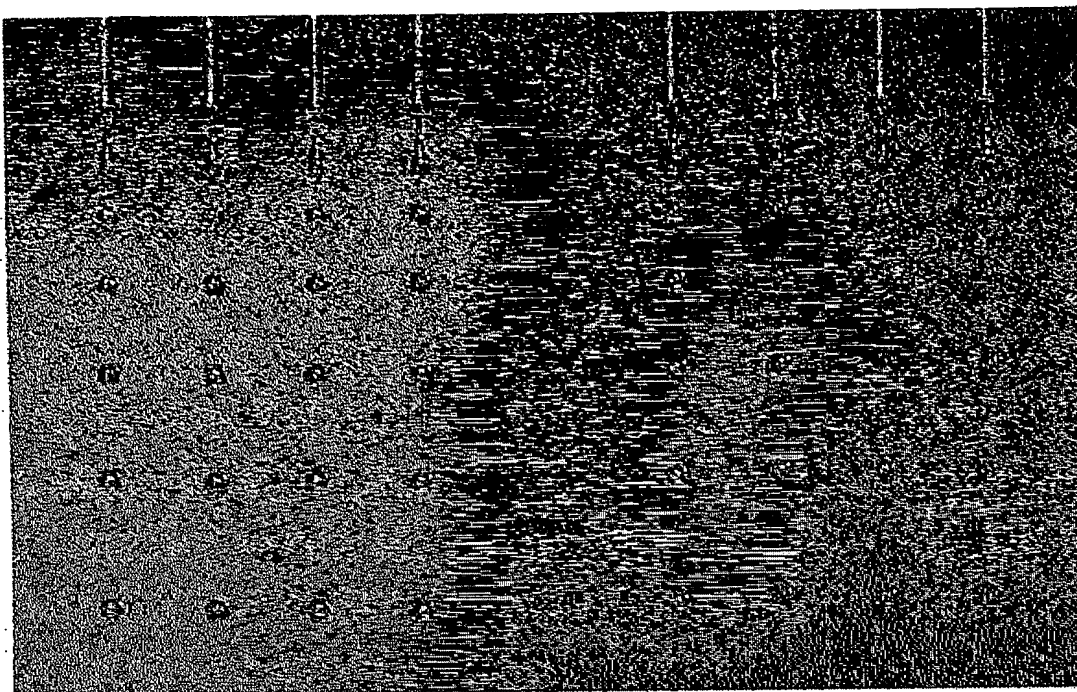
[図11]



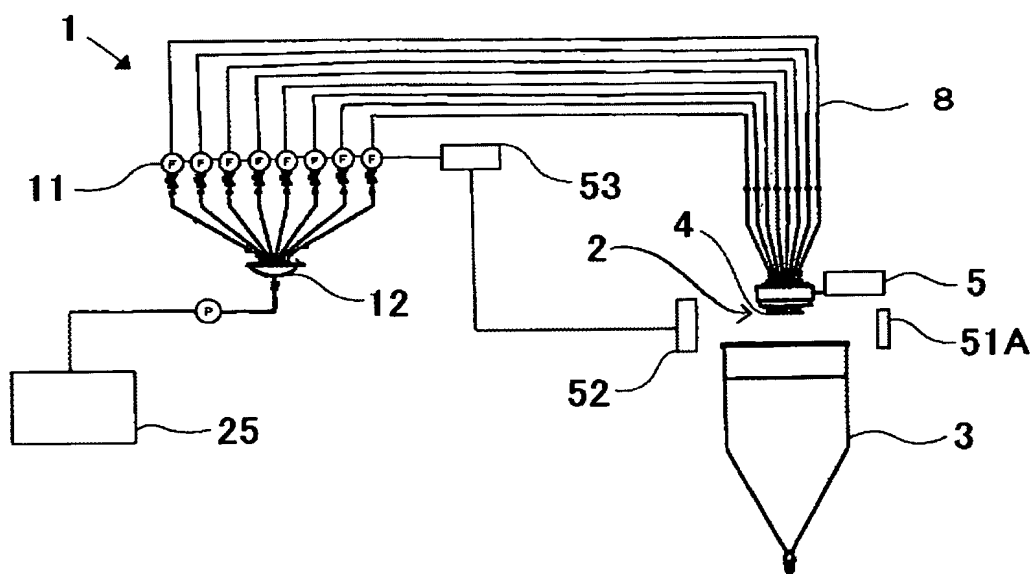
[図12]



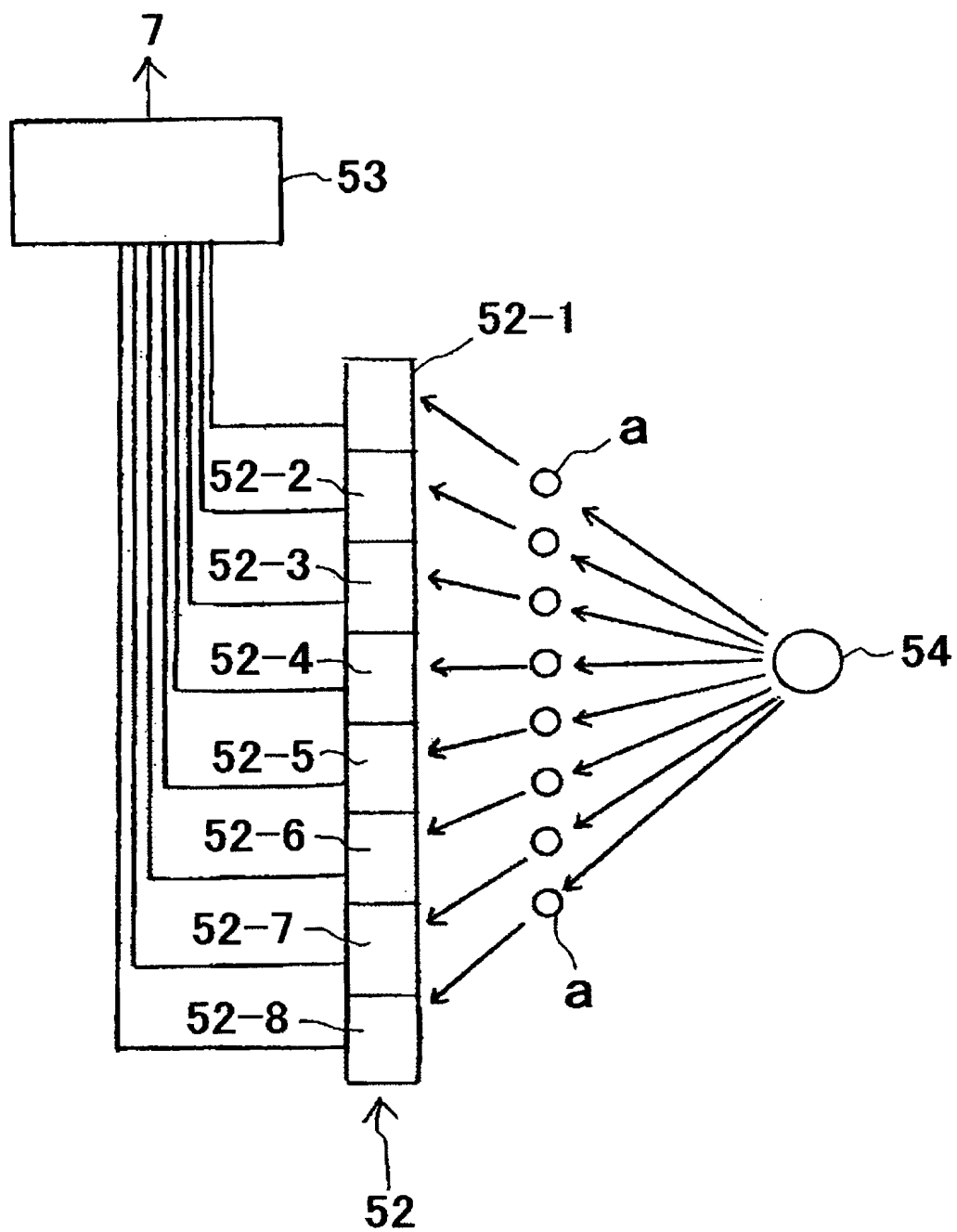
[図13]



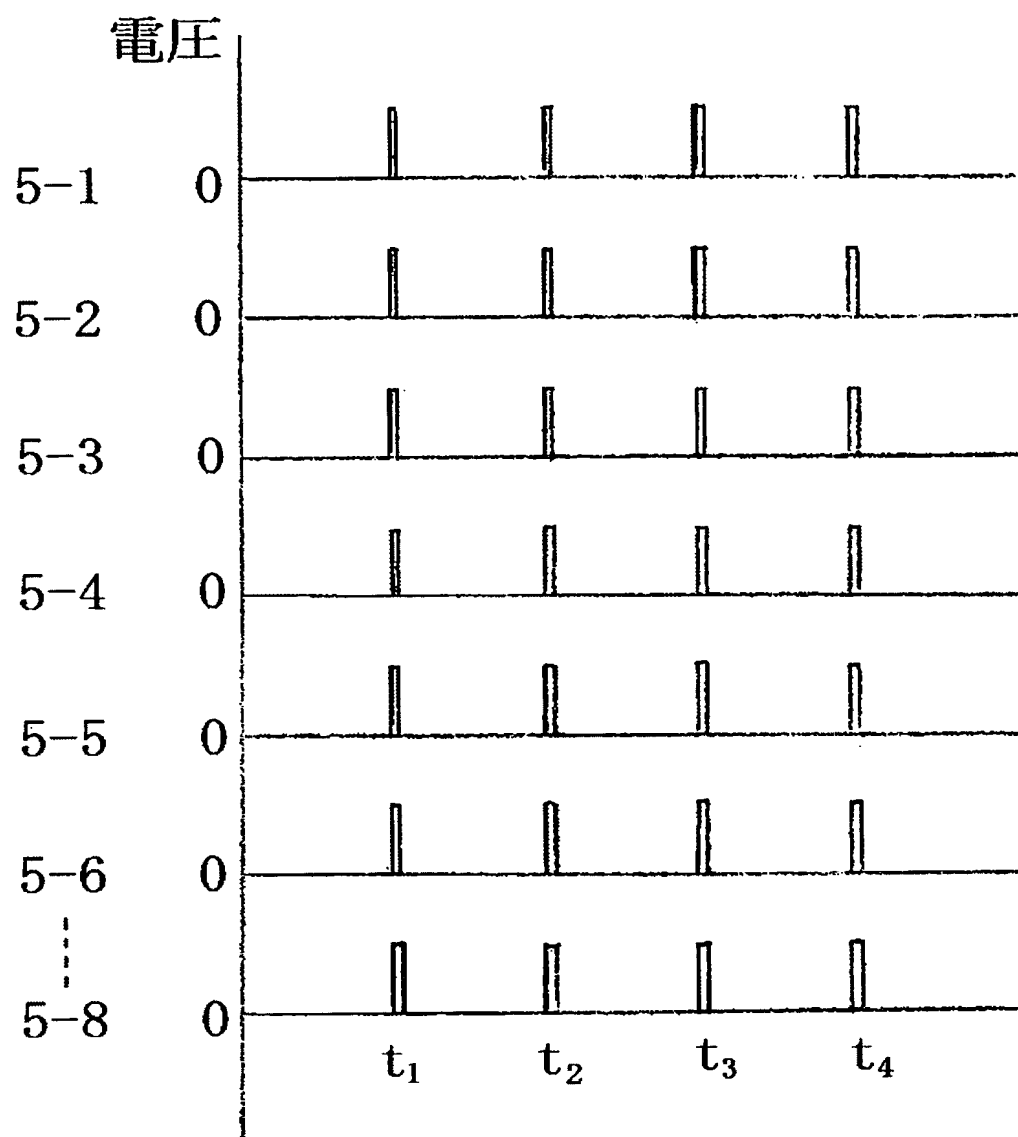
[図14]



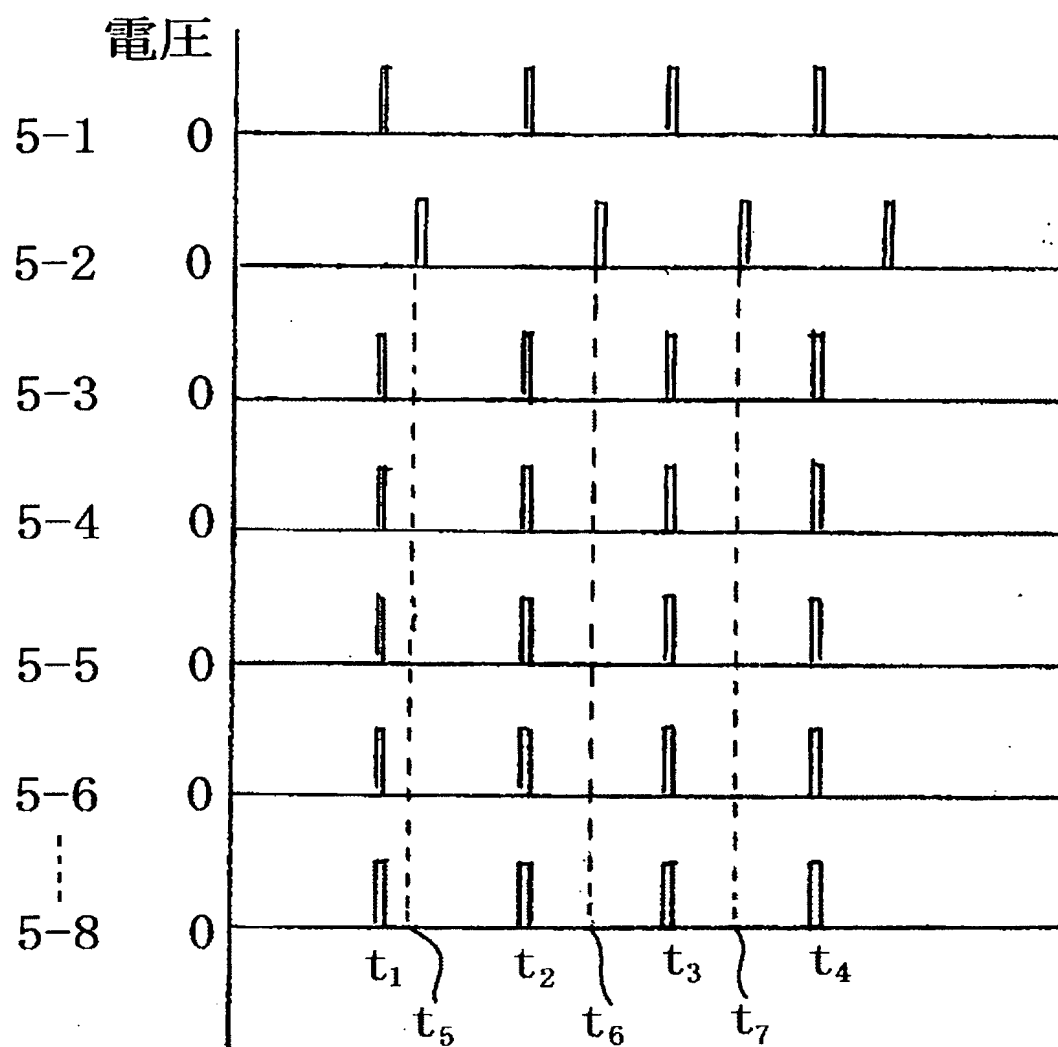
[図15]



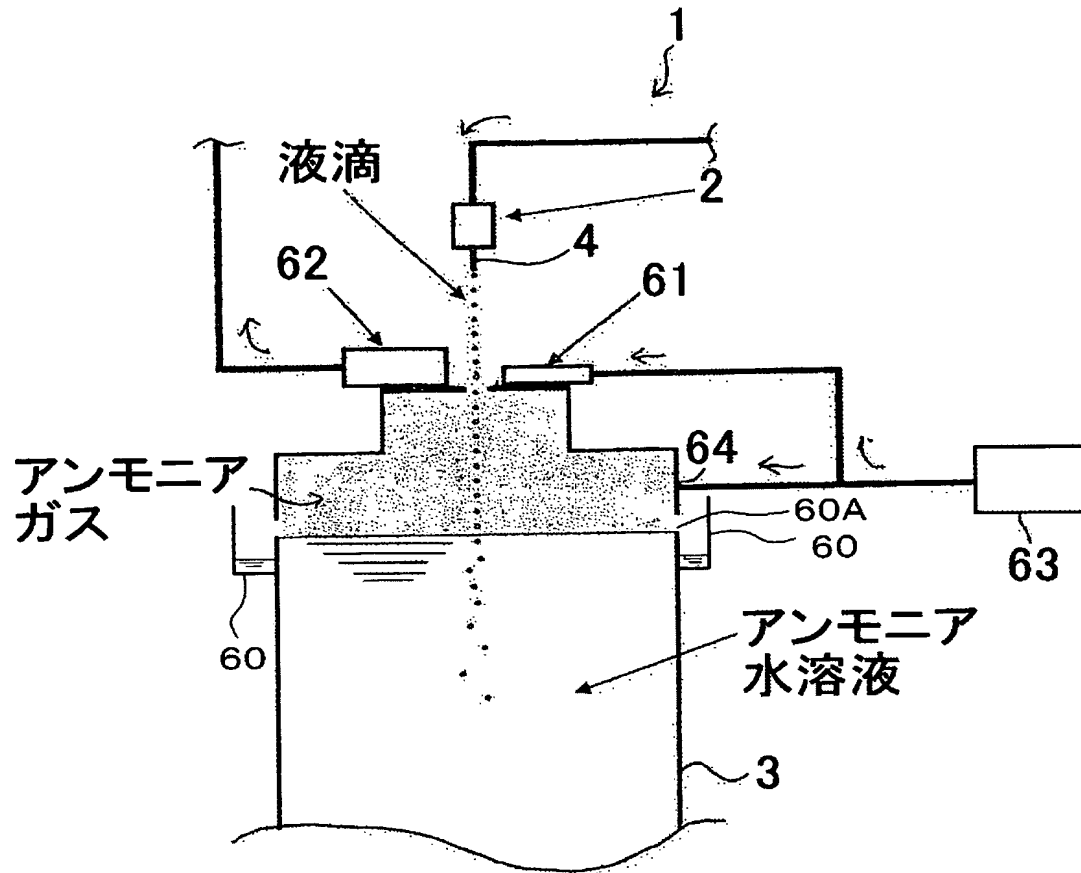
[図16(a)]



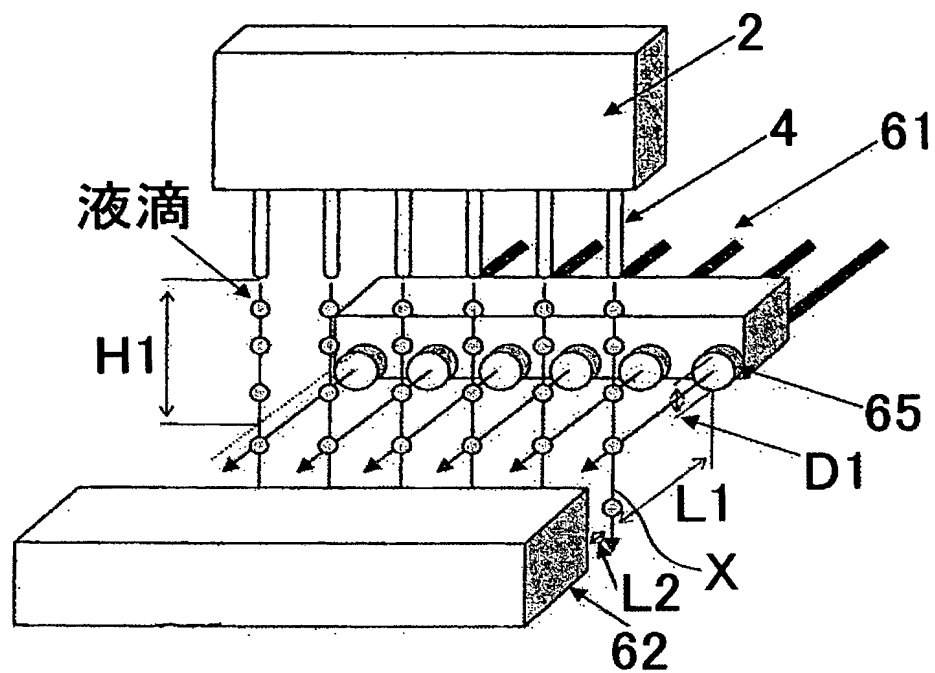
[図16(b)]



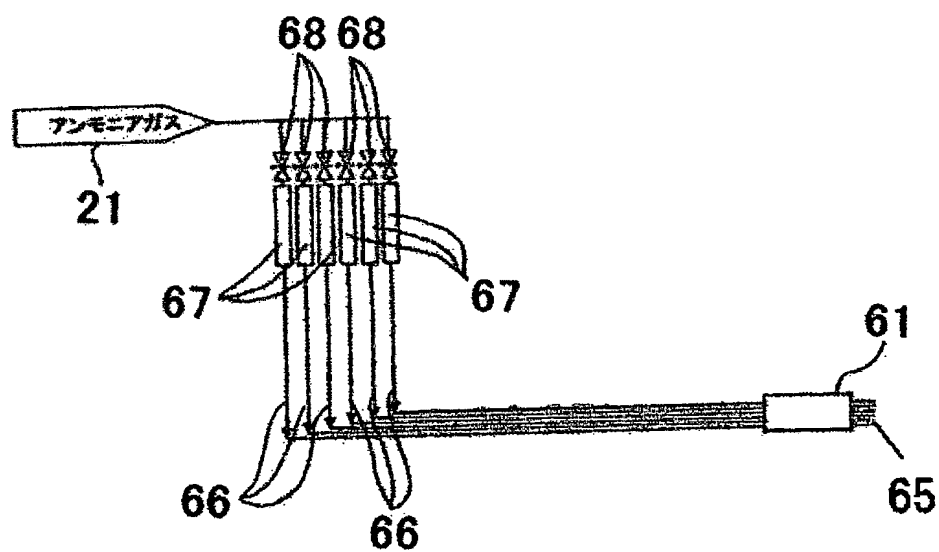
[図17]



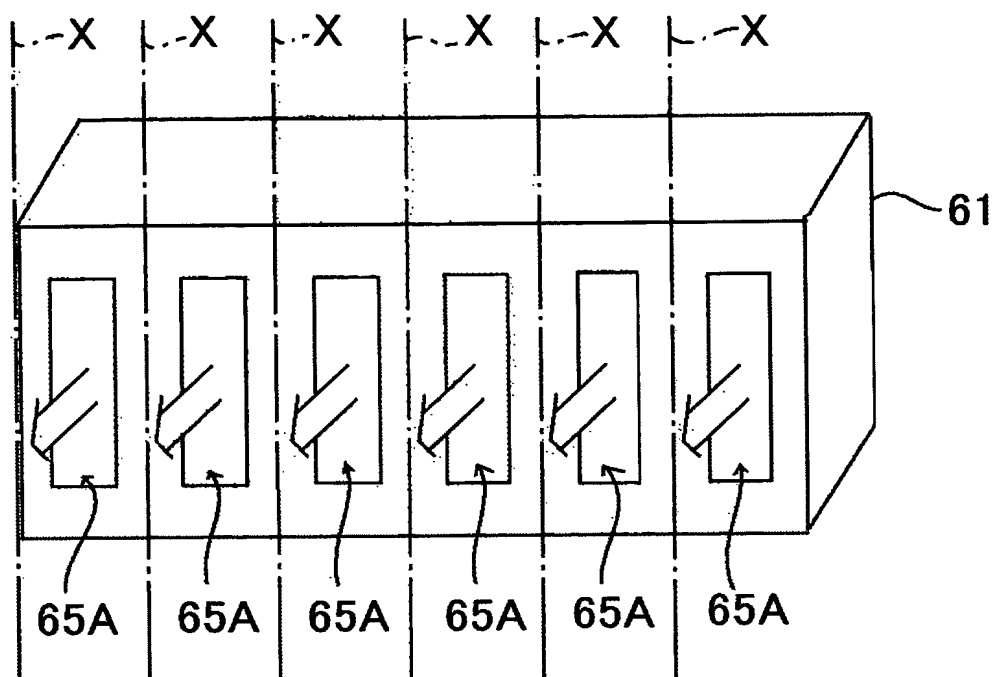
[図18]



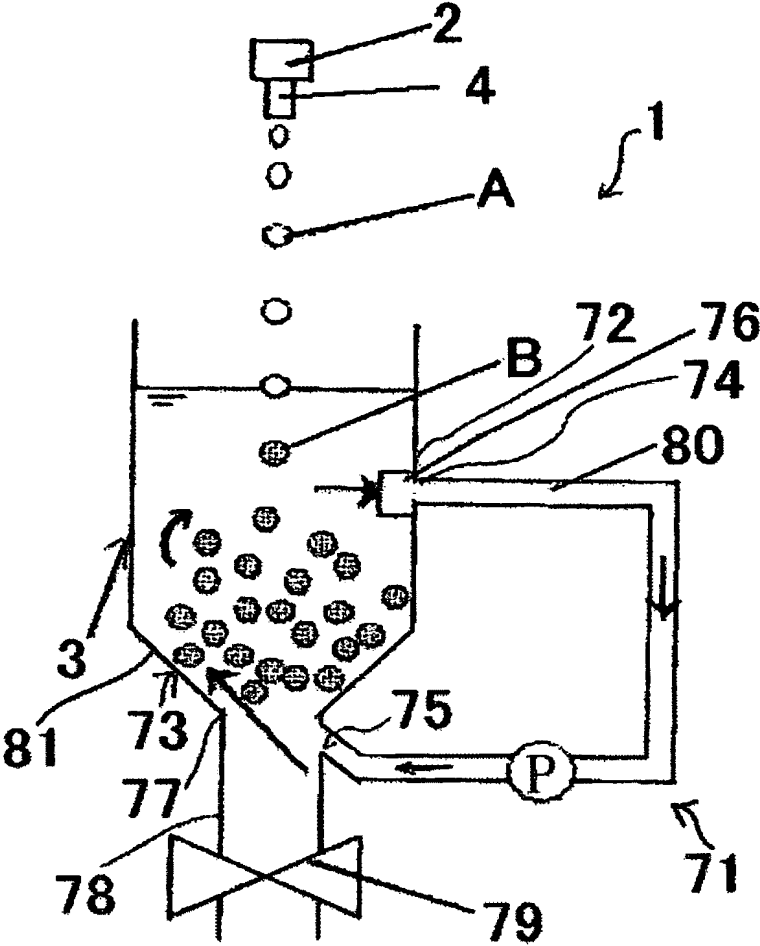
[図19]



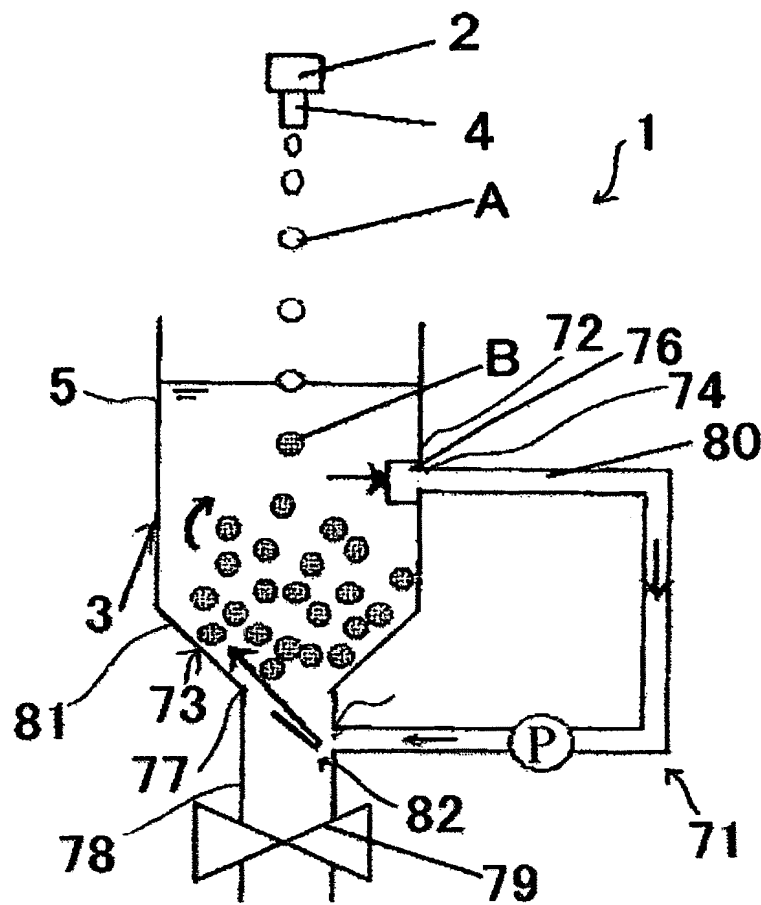
[図20]



[図21]



[図22]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/015278

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C01G43/00, B01J2/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C01G43/00, B01J2/06Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 5-256973 A (Nuclear Fuel Industrial Co., Ltd.), 08 October, 1993 (08.10.93), Claims; Par. Nos. [0014] to [0031], [0040]; examples; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-7, 14-25 8-13
X	JP 5-279043 A (Nuclear Fuel Industrial Co., Ltd.), 26 October, 1993 (26.10.93), Claims; Par. Nos. [0009] to [0024]; Figs. 1 to 2 (Family: none)	14-19, 25

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
24 January, 2005 (24.01.05)Date of mailing of the international search report
08 February, 2005 (08.02.05)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/015278

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-244683 A (Japan Atomic Energy Research Institute), 14 September, 1999 (14.09.99), Claims; examples; Fig. 1 (Family: none)	20-25
A	JP 8-231227 A (Mitsubishi Materials Corp.), 10 September, 1996 (10.09.96), Claims; examples; Fig. 1 (Family: none)	1-25
A	EP 998854 A1 (Transucrania), 10 May, 2000 (10.05.00), Claims; Fig. 1 & WO 99-040802 A	10-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C01G43/00 B01J2/06

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C01G43/00 B01J2/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2005年
 日本国登録実用新案公報 1994-2005年
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 5-256973 A(原子燃料工業株式会社)1993.10.8 特許請求の範囲, 【0014】 - 【0031】 , 【0040】 , 実施例, 図1-3(ファミリーなし)	1-7, 14-25
A		8-13
X	JP 5-279043 A(原子燃料工業株式会社)1993.10.26 特許請求の範囲, 【0009】 - 【0024】 , 図1-2(ファミリーなし)	14-19, 25
A	JP 11-244683 A(日本原子力研究所)1999.9.14 特許請求の範囲, 実施例, 図1(ファミリーなし)	20-25

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

24.01.2005

国際調査報告の発送日

08.02.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大工原 大二

4G

9343

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 8-231227 A(三菱マテリアル株式会社)1996. 9. 10 特許請求の範囲, 実施例, 図1(ファミリーなし)	1-25
A	EP 998854 A1(Transucrania)2000. 5. 10 claims, Fig. 1 &WO 99-040802 A	10-13